



**Universidad**  
Zaragoza

## Trabajo de Fin de Grado

### **Fenómenos de cuantización de flujo en hilos superconductores de alta temperatura.**

Flux quantization phenomena in high temperature superconducting wires.

Autor

Teresa Guallart Naval

Directores

Antonio Badía Majós

Irene Lucas del Pozo

FACULTAD DE CIENCIAS  
2019



# Índice general

<b>1. Introducción.</b>	<b>1</b>
1.1. Contexto histórico. . . . .	1
1.2. Marco teórico. . . . .	2
1.2.1. Propiedades básicas de la superconductividad. . . . .	2
1.2.2. Teoría de Ginzburg-Landau. . . . .	3
1.2.3. Vórtices. . . . .	5
1.2.4. Efecto Josephson. . . . .	7
1.3. YBaCuO a escala nanométrica. . . . .	7
1.4. Objetivos. . . . .	8
<b>2. Caracterización estructural.</b>	<b>9</b>
2.1. Fabricación de las muestras. . . . .	9
2.2. Difracción de rayos X. . . . .	11
2.3. Reflectividad de rayos X. . . . .	12
2.4. Microscopía electrónica. . . . .	13
2.4.1. Imágenes tomadas por TEM. . . . .	14
2.4.2. Espectroscopía EDX. . . . .	15
<b>3. Caracterización eléctrica.</b>	<b>16</b>
3.1. Montaje experimental. . . . .	16
3.2. Transición al estado superconductor. . . . .	17
3.3. Medidas de magnetoresistencia. . . . .	18
3.4. Propiedades de la magnetorresistencia oscilante. . . . .	21
<b>4. Conclusiones.</b>	<b>24</b>



# Capítulo 1

## Introducción.

A bajas temperaturas algunos materiales cambian drásticamente sus características eléctricas y magnéticas. No presentan resistencia al paso de corriente eléctrica y son capaces de expulsar parcialmente o en su totalidad el campo magnético de su interior. Este fenómeno es lo que en física conocemos como **superconductividad**, y lograr comprenderlo es uno de los grandes desafíos científicos del momento. Esto se justifica tanto por el amplio abanico de aplicaciones que ofrece, pues podría dar lugar a una gran revolución tecnológica, como por los notables aspectos científicos que abarca, entre otros, la aparición de efectos cuánticos a escala macroscópica. Con este trabajo se pretende añadir un pequeño granito de arena en el estudio de este estado.

### 1.1. Contexto histórico.

Resulta interesante hacer un breve análisis de los avances científicos realizados sobre la superconductividad desde su descubrimiento hasta la actualidad, con lo que se contextualizará el marco teórico en que se desarrolla este trabajo.

El estado superconductor fue observado por primera vez en 1911, momento en el que la tecnología criogénica se desarrolló lo suficiente como para conseguir temperaturas cercanas al cero absoluto. Un grupo de investigación liderado por Kammering Onnes observó en una muestra de *Hg* que la **resistencia eléctrica** se hacía **nula** drásticamente en un pequeñísimo rango de temperaturas alrededor de los  $4,2K$ . En los siguientes años se descubrió que, sorprendentemente, esta transición no era algo extraño, docenas de elementos la presentan; temperaturas críticas comprendidas entre  $0,01K$  (*W*) y  $9,3K$  (*Nb*). Pronto se observó igualmente la **expulsión total del flujo magnético** del interior de estos materiales en estado superconductor, es lo que se denominó **efecto Meissner**.

En las siguientes décadas se observó el fenómeno en multitud de compuestos, aleaciones como *NbSn*, *NbTi*, etc. que presentaban temperaturas críticas algo mayores (alrededor de  $20K$ ). Sin embargo, no existía ninguna teoría que fuera capaz de explicarlo. La superconductividad se descubrió en un momento de la historia en el que no se tenían los conocimientos de la física necesarios para entenderla. Por esto, no fue hasta mediados del siglo XX cuando se desarrollaron las primeras teorías, de acuerdo con los avances de la física en campos como la mecánica cuántica o la teoría de transiciones de fase. En 1950 se desarrolló, a nivel macroscópico, la **teoría de Ginzburg-Landau**, se referirá a ellos como GL. Se trata de un desarrollo totalmente fenomenológico basado en la teoría de transiciones de fase. No fue hasta 1957 cuando apareció la primera teoría microscópica que explicaba con éxito todos los materiales superconductores descubiertos hasta el momento: **teoría BCS**, su nombre viene de las siglas de quienes la idearon (J. Bardeen, L. Cooper y J. R. Schrieffer). Esta teoría explica la superconductividad a través de la formación de **pares de Cooper**: pares de electrones ligados. Además con la teoría BCS se predice una importante propiedad del fenómeno: la existencia de un **gap superconductor**, banda de energía prohibida que representa la ganancia de energía que supone la formación de un par de Cooper (este gap decrece de forma continua con la temperatura hasta anularse en  $T_c$ ). Por otro lado, se descubrió que los pares de Cooper podían pasar entre dos SC ligeramente separados por efecto túnel; este interesante fenómeno se conoce

como **efecto Josephson**.

El mismo año en el que se formuló la teoría BCS, Abrikosov predijo la posibilidad de penetración parcial de flujo en un material en estado superconductor en forma de **vórtices**. A los SC<sup>1</sup> que presentan este interesante estado mixto se les denominó de **tipo II**, dejando con el nombre de **tipo I** a aquellos que presentan el efecto Meissner.

Tras esto, la comunidad científica ha invertido muchos esfuerzos en tratar de descubrir nuevos materiales que presentaran el fenómeno a temperaturas más elevadas que los descubiertos hasta aquel momento. El gran salto en este aspecto se dió en 1986 cuando se estudiaron compuestos del grupo de los cupratos y se descubrió una  $T_c \sim 30K$  en LaBaCuO, la mayor descubierta hasta el momento. Continuando en esta línea de investigación en 1987 se descubrió que el YBaCuO tiene una  $T_c$  máxima de  $95K^2$ ; ¡superior a la temperatura de ebullición del Nitrógeno ( $\sim 77K$ )! Posteriormente se han descubierto muchos más compuestos con altas temperaturas críticas.

Sin embargo, el estado superconductor de estos materiales es difícil de entender, en ellos los portadores de corriente siguen siendo pares de Cooper, pero la interacción que los forma no puede ser la propuesta por la teoría microscópica. La teoría BCS no es errónea, simplemente no es suficiente para explicar estos SC de alta temperatura crítica, **HTS**, a lo que se conoce como superconductividad **no convencional**. De hecho, la teoría BCS implica una  $T_c$  muy por debajo de la que presentan estos SC no convencionales. Se conocen como SC **convencionales** aquellos que sí son explicables por la teoría BCS.

La teoría de GL se puede aplicar a los materiales no convencionales, pero no deja de ser una teoría a nivel macroscópico (en realidad mesoscópico) y no es capaz de describir la interacción responsable. Lograr comprender al completo este fenómeno de la superconductividad es uno de los grandes retos científicos del momento, ya que materiales superconductores a temperaturas más cercanas a la ambiente resultarían muy interesantes para aplicaciones tecnológicas.

No obstante, los superconductores actualmente tienen ya multitud de aplicaciones. En este momento, gracias a su propiedad de resistencia nula los imanes más potentes del mundo están fabricados con bobinas de cables superconductores utilizados en diferentes ámbitos: investigación científica (e.g. aceleradores de partículas), medicina (resonancias magnéticas) o producción de energías renovables. La propiedad de expulsión de flujo magnético, que puede traducirse en hacer levitar objetos, también pretende ser explotada para aplicaciones en el mundo del transporte en los futuros años. Por otro lado, el efecto Josephson es el fundamento teórico de sensores ultrasensibles (SQUID) muy utilizados en investigaciones científicas o en medicina (magnetoencefalogramas). Este abanico de aplicaciones crecería aún más con la completa comprensión del estado SC.

## 1.2. Marco teórico.

A lo largo de este trabajo se estudiará una muestra nanométrica de YBaCuO con el objetivo de analizar su respuesta al campo magnético debido al efecto de los vórtices presentes en superconductores HTS. Para ello es necesario introducirse de forma más profunda en el modelo científico actual. Se detallan a lo largo de este apartado únicamente los aspectos relevantes al estudio que se desarrolla a lo largo del trabajo.

### 1.2.1. Propiedades básicas de la superconductividad.

Todos los materiales en estado superconductor se caracterizan por dos propiedades macroscópicas altamente destacables.

- **Resistencia nula.** En este trabajo se estudia la transición a resistencia nula de los HTS.
- **Expulsión del flujo magnético.** Como se ha mencionado anteriormente, la expulsión de flujo puede ser total, **efecto Meissner**, o parcial. En este último caso, el flujo magnético penetra en el material de forma cuantizada, **vórtices**; se tratará este efecto cuántico a escala macroscópica en el apartado de 1.2.4.

---

<sup>1</sup>Se emplea como abreviatura de superconductor.

<sup>2</sup>En YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6,94</sub>.

El estado superconductor no sólo es dependiente de la temperatura, con su correspondiente **temperatura crítica** que lo devuelve al estado normal,  $T_c$ . Un campo magnético suficientemente intenso también puede destruirlo; **campo magnético crítico**,  $H_c$ . Los superconductores de tipo II presentan dos campos críticos, el inferior, a partir del cual se destruye el efecto Meissner y el superior, en el que se destruye al completo el estado superconductor. Se observa la dependencia de ambas magnitudes en la figura 1.1. Los de tipo I no presentan estado mixto y poseen un único campo crítico. Por otro lado, existe también una **corriente crítica de desapareamiento**,  $I_c$  a partir de la cual se rompen los pares de Cooper, se trata de una corriente muy elevada, completamente alejada de las corrientes máximas introducidas en estos materiales para cualquier aplicación. En SC de tipo I esta corriente está unida a  $H_c$ , en ese caso  $I_c$  es la corriente inducida en la superficie del SC para expulsar completamente el campo magnético de su interior. Sin embargo, en SC de tipo II no se llega a alcanzar esta corriente crítica, ya que aparece resistencia en el material para corrientes mucho menores debido al movimiento de los vórtices dentro del material. A esta corriente la denominaremos **corriente crítica macroscópica**, que depende del material, sus deformaciones estructurales y otros muchos parámetros más. Se hablará de ella en detalle en el apartado 1.2.4. En este trabajo la corriente crítica de desapareamiento no tiene ninguna relevancia.

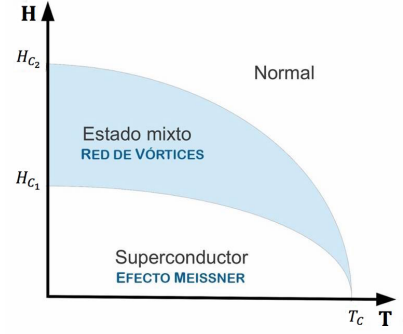


Figura 1.1: Dependencia de los campos críticos  $T_c$  y  $H_c$ .

### 1.2.2. Teoría de Ginzburg-Landau.

Las transiciones de fase se agrupan en dos tipos: de primer o segundo orden, según los fenómenos que las acompañan. Las de primer orden involucran un calor latente, presentan un cambio de volumen y aparece histéresis en la transición; mientras que, las de segundo orden presentan una discontinuidad en el calor específico sin que aparezcan los otros efectos mencionados.

Ginzburg y Landau [1] desarrollaron una teoría de transiciones de fase basándose principalmente en un concepto clasificador: parámetro de orden. Además, con esta teoría se muestra la gran relevancia de pequeñas fluctuaciones de las condiciones en torno a la transición. Se verá este hecho a lo largo del presente trabajo.

Estudios relacionados con el calor específico a lo largo de esta transición, muestran una discontinuidad al pasar  $T_c$ , por lo que se trata de una **transición de fase de segundo orden**. Así pues, la teoría fenomenológica de la superconductividad comienza definiendo el parámetro de orden. Por debajo de  $T_c$  y  $B_c$  aparece progresivamente una corriente superconductor, es decir, electrones en estado superconductor. Se define el parámetro de orden como un función de onda compleja,  $\psi$ , tal que:

$$|\psi|^2 = n_s$$

donde  $n_s$  es la **densidad de electrones superconductores**. Notablemente, con  $\psi$  se representa un estado macroscópico.

Ginzburg y Landau comenzaron su teoría asumiendo que la energía libre de Gibbs del sistema,  $G_s$ , puede expresarse como un desarrollo en serie del parámetro de orden en torno a la temperatura crítica, utilizaron distintos argumentos con los que se demostró que las potencias impares podían despreciarse. En presencia de campo magnético  $\vec{B}$ , cuyo potencial vector viene representado por  $\vec{A}$ , la expresión para un volumen del material superconductor,  $V_s$ , queda de la forma:

$$G_s(\vec{H}, T, \psi(r)) = G_n(0, T) + \int_{V_s} \left[ \alpha |\psi(r)|^2 + \frac{\beta}{2} |\psi(r)|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| \left( \frac{\hbar}{i} \nabla - e^* \vec{A} \right) \psi(r) \right|^2 \right] dv + \frac{1}{2\mu_o} \int_{V_s} |\vec{B}(r)|^2 dv - V_s \vec{H} \vec{B} \quad (1.1)$$

donde  $G_n$  es la energía libre del estado normal,  $m^*$  y  $e^*$  son la masa y carga de los pares de Cooper (equivalente a dos electrones),  $\mu_o$  es la permeabilidad magnética del vacío y, finalmente,  $\alpha$

y  $\beta$  son parámetros característicos del material dependientes de  $T$ . Estos parámetros, que hasta ahora aparecen meramente como útiles matemáticos, pueden relacionarse de forma sencilla con la densidad de superelectrones de equilibrio,  $n^*$ .  $\partial_{n_s} G_s|_{n_s=n^*} = 0$  implica:

$$n^* = -\frac{\alpha}{\beta} \quad (1.2)$$

Además, en estado superconductor estos parámetros cumplen las siguientes relaciones:

$$\alpha < 0 \quad \beta > 0$$

en otro caso la ecuación 1.1 no sería buena representante del estado superconductor (mínimos de energía).

Con esto, no es necesario adentrarse demasiado en las matemáticas para ver que el estado superconductor es energéticamente rentable debajo de  $T_c$  en ausencia de campo magnético. Suponiendo una densidad de electrones superconductores constante en el volumen, la expresión de variación de energía libre es claramente favorable.

$$G_s - G_n = \left( \alpha |\psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4 \right) V_s \quad (1.3)$$

A la magnitud  $G_s - G_n$  se le llama energía de condensación del estado SC y es definida según la ecuación 1.4.

$$G_s - G_n \equiv -\frac{1}{2} \mu_o H_c^2(T) V_s \quad (1.4)$$

Nótese por tanto la relación entre  $\alpha$  y  $\beta$  y el campo magnético crítico del material<sup>3</sup>.

$$\frac{\alpha^2(T)}{\beta(T)} = \mu_o H_c^2(T)$$

Volviendo al caso general, si se aplica campo magnético con el correspondiente aumento de  $G_s$  debido a la energía magnética (quinto término en la ecuación 1.1); aparecen sobre el material en estado SC supercorrientes que expulsan el flujo del interior reduciendo ese término. Sin embargo, esto supone un aumento de energía cinética que corresponde con el cuarto término en la ecuación 1.1. La suma de energía de estos dos hechos puede llegar a superar la energía de condensación de forma que deje de ser rentable mantener el estado superconductor. Con el objetivo de disminuir estas aportaciones algunos materiales superconductores admiten flujo en su interior en forma de vórtices, se analizará más adelante.

Minimizando esta expresión de la energía libre, 1.1, respecto al parámetro de orden y al potencial magnético vector se obtienen las ecuaciones de Ginzburg-Landau, con las que se pueden obtener importante resultados como: la expresión de las supercorrientes, o la distribución espacial de parámetro de orden respectivamente.

Como se ha mencionado, esta teoría no da una explicación de la formación de los pares de Cooper. Sin embargo, GL ayuda a comprender muchos fenómenos asociados a este estado, incluidos los que ocurren en SC no convencionales. La teoría se ayuda de la definición de unos parámetros superconductores que permiten clasificar y obtener las condiciones más óptimas de los materiales superconductores. Se muestran estos parámetros clasificadores y sus consecuencias en los siguientes apartados. La teoría de GL es, actualmente, la herramienta principal en el estudio de vórtices.

### Parámetros superconductores.

Como consecuencia directa de las ecuaciones de GL aparecen dos parámetros fundamentales de los materiales SC, ambos relacionados con los auxiliares  $\alpha$  y  $\beta$ .

- **Longitud de coherencia,  $\xi$ .** Es la longitud característica en la que el parámetro de orden varía de su valor de equilibrio. En otras palabras, representa la escala de variación de  $\psi$  en la ecuación 1.1.

---

<sup>3</sup>Y por tanto, la dependencia de ambos parámetros con la temperatura.



- **Longitud de penetración,  $\lambda$ .** Es la longitud característica en que pueden penetrar campos magnéticos en el interior del superconductor, representa la escala de variación de  $B$  en la ecuación 1.1.

De hecho, aparecen de forma natural a partir de las ecuaciones de Ginzburg-Landau [1], donde se obtiene la relación entre ellos, expresada en la ecuación 1.5.

$$\xi = \frac{\phi_0}{2\sqrt{2}\pi\mu_0 H_c \lambda} \quad (1.5)$$

Así pues, teniendo en cuenta esta expresión 1.5 se puede reescribir la ecuación 1.1, expresandola en función del parámetro de orden adimensional,  $f = \psi(r)/n^*$ , en función de los parámetros superconductores:

$$\begin{aligned} G_s(\vec{H}, T, \psi(r)) - G_n(0, T) = \\ -\mu_0 H_c^2 \int_{V_s} \left[ |f|^2 - \frac{1}{2}|f|^4 - \xi^2 \left| \left( \frac{\nabla}{i} + \frac{2\pi}{\Phi_0} \vec{A} \right) f \right|^2 \right] dv + \\ \frac{1}{2\mu_0} \int_{V_s} |\vec{B}(r)|^2 dv - V_s \vec{H} \vec{B} \end{aligned} \quad (1.6)$$

con lo que queda patente el sentido físico de ambos parámetros.

La relación entre ambos parámetros es lo que se define como **parámetro de Ginzburg-Landau,  $\kappa$** .

$$\kappa = \frac{\lambda(T)}{\xi(T)} \quad (1.7)$$

Como veremos, esta relación es la que permite clasificar los dos tipos de materiales superconductores.

### Tipos de materiales superconductores.

Mediante un análisis riguroso de la ecuación de energía libre (ecuación 1.6) A. Abrikosov [2] demostró que existen dos tipos de materiales superconductores, clasificados por el valor de  $\kappa$ .

$$\text{Tipo I: } \kappa < \frac{1}{\sqrt{2}} \qquad \text{Tipo II: } \kappa > \frac{1}{\sqrt{2}}$$

Brevemente, en los materiales de tipo II resulta rentable energéticamente la penetración parcial de flujo, en forma de unidades cuantizadas o vórtices, por compensación entre la energía de condensación (términos primero y segundo en la ecuación 1.6) y la energía cinética de las corrientes y magnetostática (términos tercero y cuarto de la ecuación 1.6). Mientras que en los materiales de tipo I esto no es rentable energéticamente y se observa la expulsión total de flujo, como ya se ha comentado.

### 1.2.3. Vórtices.

Merece la pena dedicar una sección especial para el estudio de los vórtices partiendo de la teoría de GL, ya que la cuantización del flujo a través de los materiales tipo II es una consecuencia directa de dicha teoría. Se comienza este apartado estudiando matemáticamente este tan interesante hecho cuántico macroscópico.

Como se ha comentado, siguiendo un cálculo diferencial a partir de la expresión 1.1 se obtiene la expresión de la supercorriente,  $\vec{J}_s = \partial_{\vec{A}} G_s$ :

$$\vec{J}_s \propto \hbar \vec{\nabla} \varphi - e^* \vec{A} \quad (1.8)$$

donde  $\varphi$  es la fase del parámetro de orden complejo:  $\psi(r) = |\psi(r)| e^{i\varphi(r)}$ .

Físicamente, esta ecuación indica que la teoría de GL asegura la conservación de carga (invariancia gauge para el potencial vector  $\vec{A}$ ). Por otro lado, la integración de ec. 1.8 a lo largo de un

camino cerrado que contiene a un vórtice nos conduce a la deducción de la cuantización de flujo que penetra en él. Si tomamos un camino sobre el cual las corrientes han decaído suficientemente se tiene:

$$\oint \vec{J}_s \cdot d\vec{l} = 2\pi n\hbar - \oint e^* \vec{A} \cdot d\vec{l} = 2\pi n\hbar - \iint e^* \vec{B} \cdot d\vec{S} = 2\pi n\hbar - e^* \phi = 0$$

donde  $n$  es un número entero. En conclusión, el flujo que penetra en un superconductor únicamente puede hacerlo de forma cuantizada.

$$\phi = n \frac{h}{e^*} = n\phi_0 \quad (1.9)$$

Se conoce a esta cantidad  $\phi_0$ <sup>4</sup> con el nombre de **cuanto de flujo** o *fluxón*. Se observa en la figura 1.2 la estructura de un vórtice de acuerdo con los parámetros característicos GL. La zona en la que se encuentra deprimido el parámetro de orden se denomina núcleo de vórtice; alrededor de él es donde aparecen las supercorrientes mencionadas.

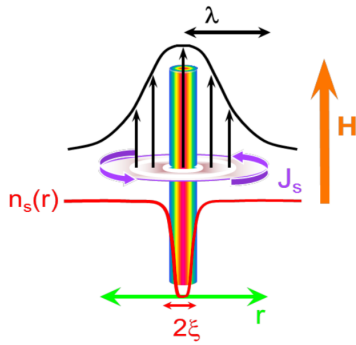


Figura 1.2: Estructura vórtice superconductor.

Mediante argumentos energéticos puede demostrarse que la interacción entre vórtices es en esencia del tipo dipolar. Si dos vórtices se acercan una distancia menor a  $\lambda$  la energía magnética aumenta de forma notable. Por lo que, dentro del material los vórtices tenderán a situarse lo más alejados posible. Como es lógico, al aumentar el campo magnético aplicado sobre un material en estado mixto el número de vórtices aumenta. La interacción repulsiva que aparece entre ellos y la acción del campo externo que los presiona hacia el interior hace que se organicen en una característica red de equilibrio, para lograr la distribución de mínima energía. Esta ordenación recibe el nombre de **red de Abrikosov**. Por otro lado, cuando se aplica un campo magnético tal que, la distancia entre vórtices dentro de la red es  $\xi$ , se produce el colapso de los núcleos y se destruye la superconducción<sup>5</sup>, tal y como cabe esperar.

Finalmente, debe mencionarse que la red de vórtices es inestable frente a la aplicación de corriente en el material. En este caso los vórtices se ven afectados por una fuerza tipo Lorentz:

$$\vec{F}_L = \vec{J} \times \vec{B} \quad (1.10)$$

considerando  $\vec{J}$  la densidad de corriente aplicada y  $\vec{B}$  la densidad de flujo del vórtice. Este hecho produce un movimiento de vórtices dentro del material lo que generará, por la ley de Faraday, un campo eléctrico en la dirección de la corriente. Con esto se crea una diferencia de potencial en la dirección de movimiento del núcleo. Al encontrarse en estado normal, este fenómeno se plasma en la aparición de resistencia: el material deja de ser superconductor. Nótese la relevancia de la orientación entre la corriente aplicada y el campo externo. Por ejemplo en el caso de que sean paralelos la fuerza de Lorentz se anula, con lo que no se observaría el efecto aquí detallado. A lo largo de este trabajo se analizarán varios casos relativos a este hecho. Esta es la corriente crítica macroscópica presentada en el apartado anterior 1.2.1.

Por suerte, los materiales suelen presentar impurezas, alteraciones estructurales, etc. que impiden el libre movimiento de los vórtices en el interior del material; generan una fuerza que se opone a la fuerza de Lorentz. Las particularidades de cada material dependen, entre otras cosas, de la técnica empleada para su fabricación. Las alteraciones referidas se conocen como **centros de anclaje**. Evidentemente, una corriente externa aplicada lo suficientemente grande puede arrancar los vórtices de estos centros<sup>6</sup>. No obstante, este hecho aumenta notablemente el rango de aplicación de estos materiales. A lo largo de este trabajo se consideran fenómenos relacionados con este anclaje.

<sup>4</sup> $\phi_0 = 2,067833758(46) \times 10^{-15}$  Wb.

<sup>5</sup>Campo magnético aplicado:  $H_{c2}$ .

<sup>6</sup>Al fin y al cabo los centros de anclaje son pozos de potencial en los que queda atrapado el vórtice.

### 1.2.4. Efecto Josephson.

Resulta interesante dedicar una breve sección a otro de los fenómenos cuánticos superconductoros que se observa a escala macroscópica. El efecto Josephson es un fenómeno físico mediante el cual se transmite corriente eléctrica mediante efecto túnel entre dos superconductores acoplados por un enlace débil, ya sea una delgada capa de aislante, de metal no SC o simplemente una constricción física que debilita la SC en un punto; al conjunto se le conoce como unión Josephson o débil. El efecto túnel es una consecuencia directa de la mecánica cuántica, el carácter ondulatorio de una partícula (en este caso el par de Cooper) conlleva una probabilidad no nula de que ésta atraviese una barrera de potencial.

La supercorriente que atraviesa la unión viene dada por aspectos como la diferencia de fase<sup>7</sup> entre los dos SC de la unión (y por tanto del campo magnético que la atraviesa). Esta supercorriente se define como:

$$I(t) = I_c \text{sen}(\Delta\gamma) \quad (1.11)$$

donde  $I_c$  es una constante que representa la corriente máxima que permite la unión antes de que se deje de producir el efecto Josephson y  $\Delta\gamma$  es la conocida como diferencia de fase invariante gauge que se define en ecuación 1.12.

$$\Delta\gamma = \varphi_1 - \varphi_2 - \frac{2\pi}{\phi_o} \int_1^2 A(r, t) dl \quad (1.12)$$

En la sección anterior 1.2.4 se ha mencionado la existencia de impurezas, alteraciones estructurales, etc. dentro de un material superconductor. Algunas de estas anomalías, que debilitan la superconductividad, podrían producir uniones débiles<sup>8</sup>.

### 1.3. YBaCuO a escala nanométrica.

Las propiedades eléctricas y magnéticas de los materiales superconductores dependen fuertemente de la dinámica de vórtices. Una muestra de dimensiones nanométricas resulta de gran interés a la hora de analizar efectos superconductores asociados a esta dinámica. En este caso, las longitudes características ( $\lambda, \xi$ ) son comparables a las dimensiones de la muestra; a esta escala cualquier defecto estructural, impureza, etc. resulta un centro de anclaje óptimo, causando gran impacto en las propiedades de transporte eléctrico del material. Con esto queda reflejada la gran importancia que toma la nanociencia en el estudio de la superconductividad. A lo largo de este trabajo se estudian distintas muestras de dimensiones nanométricas.

El material utilizado en este trabajo es el  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ , del grupo de los cupratos. Se trata de un material superconductor de tipo II de alta temperatura crítica muy interesante para el estudio de este tipo de SC no convencionales. A lo largo de los últimos años ha sido uno de los materiales más estudiados en este ámbito y por tanto, su síntesis es bien conocida a escala nanométrica. Además, su alta temperatura crítica resulta de gran interés práctico; se accede al estado SC únicamente enfriando con nitrógeno líquido, lo que supone, entre otras cosas, un gran ahorro económico. Ésta es la principal razón del amplio abanico de aplicaciones que presenta actualmente este material.

Se analiza la estructura cristalina de este compuesto, véase figura 1.3. Se puede apreciar la existencia de planos de cobre y oxígeno, característicos de los compuestos del grupo de los cupratos,

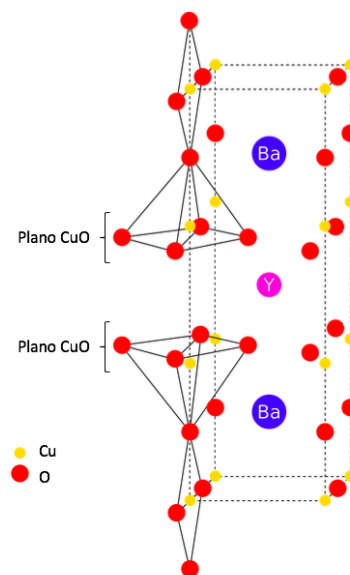


Figura 1.3: Celda unidad del YBaCuO.

<sup>7</sup>Fase del parámetro de orden complejo que representa el estado superconductor,  $\psi$ .

<sup>8</sup>Según el tamaño de la deformación.

en ellos es donde se forman los pares de Cooper. Así pues, la superconductividad está ligada a la cantidad de electrones presentes en estos planos. Por otro lado, se observa una celda unidad en la que se distinguen tres planos: uno con los iones de itrio, otro con los de bario y los ya mencionado del CuO.

Usando como referencia la figura 1.3 se toma  $\hat{c}$  como vector unitario de la dirección longitudinal, y  $\hat{a}$  y  $\hat{b}$  como las dos direcciones unitarias transversales. En 1.13 se muestran los valores característicos de los parámetros de red [3]. No obstante, en distintas muestras individuales estos parámetros dependen de la técnica de fabricación.

$$a = b = 3,85\text{\AA} \qquad c = 11,68\text{\AA} \qquad (1.13)$$

Merece la pena destacar que el YBaCuO es un superconductor anisótropo, las propiedades superconductoras dependen fuertemente de la dirección de la supercorriente. Además, estas propiedades están íntimamente relacionadas con la cantidad de oxígeno presente en la muestra; esta cantidad varía con facilidad ya sea por diversos fenómenos en las técnicas de fabricación de las muestras o simplemente por el paso del tiempo. Se muestran en la tabla 1.1 los parámetros superconductores y los campos críticos límite característicos de una película de YBaCuO, con el objetivo de hacerse una idea aproximada de los mismos.

$T_c$ [K]	$H_{c2}$ [T]	$H_{c1}$ [Oe]	$\lambda_{a,b}$ [Å]	$\lambda_c$ [Å]	$\xi_{a,b}$ [Å]	$\xi_c$ [Å]
$\sim 92$	$\sim 100$	100 – 200	$\sim 1400$	$\sim 7000$	2 – 16	1,5 – 3

Tabla 1.1: Campos críticos y parámetros superconductores de una película de YBaCuO [3].

## 1.4. Objetivos.

El objetivo de este trabajo es el estudio de la transición superconductora en películas delgadas de YBaCuO nanoestructuradas en forma de hilos<sup>9</sup>. En un trabajo anterior [4] se observaron fenómenos anómalos en la transición superconductora de un hilo. En este trabajo, con el objetivo de adentrarse en el entendimiento de este fenómeno anómalo, se estudian las propiedades superconductoras de dos hilos de distinto espesor y se comparan con las del hilo estudiado en [4]. A continuación, se detallan los aspectos en los que se centra el estudio.

- **Caracterización estructural.** Mediante difracción de rayos X y microscopía electrónica se caracterizará la estructura y composición de las muestras. La física de vórtices está ligada a la existencia de deformaciones estructurales, impurezas, etc. en las muestras, por ello, se estudiará la existencia o no de estas anomalías. Con el objetivo de encontrar la física responsable del comportamiento anómalo mencionado.
- **Medidas de transporte.** En primer lugar, se observará la transición superconductora en cada muestra,  $R(T)$ . Tras esto, para cada hilo se estudiará la magnetorresistencia en distintos puntos de la zona de transición y en función de parámetros como la orientación del campo magnético.
- **Análisis de los resultados.** Cuantitativamente, se hará un estudio comparativo de las magnetorresistencias medidas en los tres hilos al que se tratará de dar sentido físico.

<sup>9</sup>Se toman muestras realizadas en el INA como parte de un trabajo anterior.

## Capítulo 2

# Caracterización estructural.

A lo largo de este capítulo se va a detallar la caracterización estructural desarrollada para cada una de las muestras de YBaCuO en estudio. Resulta de vital importancia tener un estudio estructural detallado de las muestras. Tal y como se comentó en el capítulo anterior: la estructura cristalina, impurezas, alteraciones estructurales, etc., están íntimamente relacionadas con las propiedades físicas de la muestra superconductora, destacando la física de los vórtices.

### 2.1. Fabricación de las muestras.

Dentro de los objetivos de este trabajo no está la fabricación de los hilos en estudio. Estos hilos se fabricaron en el INA<sup>1</sup> como parte de un trabajo anterior [4]. No obstante, resulta importante hacer una breve mención del método de fabricación empleado; la técnica de fabricación está fuertemente ligada a las características estructurales de la muestra con sus anomalías y defectos. De hecho, es posible introducir artificialmente centros de anclaje en el material a través de las distintas técnicas de fabricación [5].

La técnica empleada para el crecimiento de las muestras es la Deposición por Láser Pulsado, **PLD**<sup>2</sup>. Consiste en la ablación láser de un material, con lo que se crea un plasma que termina por depositarse sobre un sustrato. Tal y como cabe esperar, el proceso se lleva a cabo en una cámara de alto vacío con el fin de minimizar el número de partículas presentes en la cámara no provenientes del blanco que puedan adherirse a la película en crecimiento creando impurezas. Además, este vacío ayuda a la deposición direccional del material evaporado. En la figura 2.1 se muestra un esquema de sistema PLD. En el caso de las muestras de este trabajo, el blanco de YBaCuO terminará por formar una capa de espesor nanométrico sobre un sustrato de MgO.

La mayor ventaja de esta técnica es la obtención de muestras de gran calidad estequiométrica de acuerdo al blanco seleccionado. Además, el PLD es una técnica que permite fabricar muestras lejos de las condiciones de equilibrio termodinámico, por lo que se puede forzar a crecer sobre un material con distinto parámetro de red ocasionando la aparición de dislocaciones. Es conocida la importancia de estas deformaciones dentro de la física de vórtices.

A partir de la película delgada de YBaCuO obtenida se fabrica la nanoestructura, hilo, mediante una técnica de **litografiado óptico**. A grandes rasgos, se cubre la película con una resina

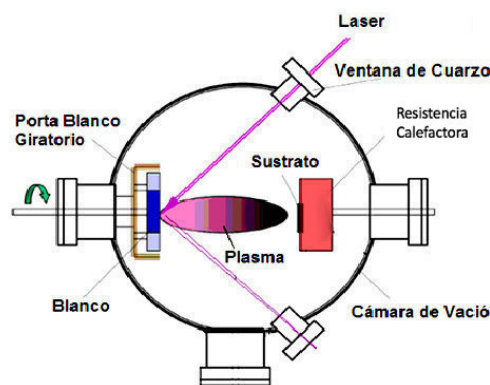


Figura 2.1: Esquema de un sistema PDL.

<sup>1</sup>Instituto de Nanociencia de Aragón.

<sup>2</sup>Pulsed Laser Deposition.

fotosensible y sobre ella se coloca una máscara con la estructura que se desea obtener<sup>3</sup>. A continuación, se expone el conjunto a una radiación ultravioleta que elimina la resina expuesta, la que queda fuera de la máscara. Tras esto, se hacen impactar iones de argón sobre la muestra con el objetivo de eliminar el material no protegido por la resina, este proceso se conoce como *ion milling*. Todo este procedimiento es muy sensible a las condiciones ambientales, por lo que debe realizarse en una sala blanca.

Finalmente, se deben crear los **microcontactos**. En primer lugar, se debe realizar otro litografiado. Se emplea una máscara de modo que quede resina en la zona complementaria donde se desean colocar los microcontactos<sup>4</sup>, y se introduce la muestra en un evaporador de oro que deposita una fina capa sobre ella. A continuación, se somete la muestra a un proceso de *lift-off* que elimina la resina de la segunda litografía junto con la capa de oro. Finalmente, se realiza la microsoldadura por medio de ultrasonidos.

El objetivo final es analizar fluctuaciones de la magnetorresistencia relacionadas con el estado superconductor en hilos de distinto espesor, con lo que se podrá analizar la dependencia de las fluctuaciones con las dimensiones de la muestra. El largo y ancho de las muestras es determinado por la máscara de litografía, para todos los hilos se utiliza la misma. En la figura 2.2 se muestran estas dimensiones.

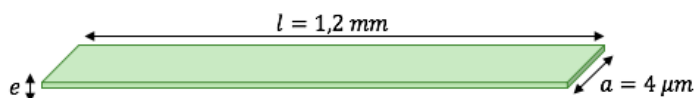


Figura 2.2: Dimensiones hilos.

En cuanto al espesor de las muestras, se controla a través del PLD con la selección de parámetros tales como la energía del haz láser o el número de pulsos por segundo. En este trabajo se estudian dos hilos de distinto espesor (hilos A y C) y se comparan con otro hilo de espesor intermedio anteriormente estudiado (hilo B) [4]. Ver tabla 2.1.

Hilo A	$\sim 34 \text{ nm}$
Hilo B	$\sim 63 \text{ nm}$
Hilo C	$\sim 103 \text{ nm}$

Tabla 2.1: Espesores de los hilos utilizados para medidas de transporte.

Las medidas de caracterización estructural mediante rayos X (secciones 2.2 y 2.3) se hacen sobre la película antes del litografiado ya que se tiene mayor estadística y las medidas son más fiables. En este trabajo se realiza esta caracterización únicamente sobre las películas correspondientes al espesor de los hilos A y B, pues la película correspondiente al hilo B ya ha sido estudiada [4]. Al realizar las medidas de transporte eléctrico se comprobará si cada hilo es buen representante de la película delgada tras el proceso de litografiado. Por suerte, ha sido el caso de los hilos analizados en este trabajo, no obstante, se verá gráficamente en el siguiente capítulo (Cap. 3).

Por otro lado, para la caracterización mediante microscopio electrónico (sección 2.4) se usa una muestra distinta a las anteriores de espesor intermedio,  $\sim 70 \text{ nm}$ , ya que se trata de una técnica destructiva al requerir la obtención de una parte de la muestra para su análisis.

<sup>3</sup>Máscara que contiene la estructura del hilo junto con las zonas donde se realizarán los microcontactos para la caracterización eléctrica.

<sup>4</sup>Máscara complementaria a la empleada para el proceso de *ion milling*, incluyendo también el hilo.

## 2.2. Difracción de rayos X.

Para comenzar con la caracterización estructural se hace un estudio de las muestras mediante difracción de rayos X, **XRD**<sup>5</sup>. Esta técnica proporciona información sobre la estructura cristalina, en concreto sobre los diferentes planos atómicos presentes en la muestra. Con esto se puede observar si el crecimiento ha sido epitaxial en la dirección deseada o si aparecen fases espúreas en el material, descartando un crecimiento anómalo.

La técnica consiste en hacer incidir un haz de rayos X sobre la muestra para distintos ángulos de incidencia y estudiar el patrón de difracción. Los máximos de intensidad del patrón de difracción muestran información sobre los planos de la red cristalina ( $hkl$ ). La distribución de máximos viene dada por la **ley de Bragg**, que se plasma en la siguiente ecuación:

$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta \quad (2.1)$$

donde  $\lambda$  es la longitud de onda del haz de rayos X incidente,  $\theta$  el ángulo de incidencia,  $n$  el orden de reflexión y  $d_{hkl}$  es la distancia entre dos planos del cristal adyacentes. Esta ley resulta muy sencilla de comprender gráficamente, véase figura 2.3.

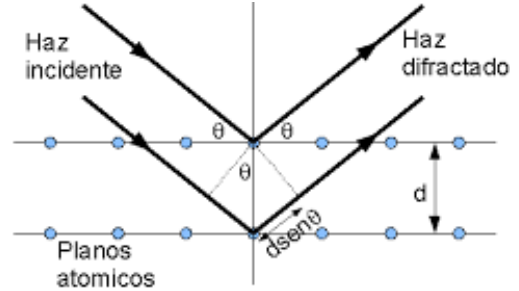


Figura 2.3: Representación gráfica de la ley de Bragg.

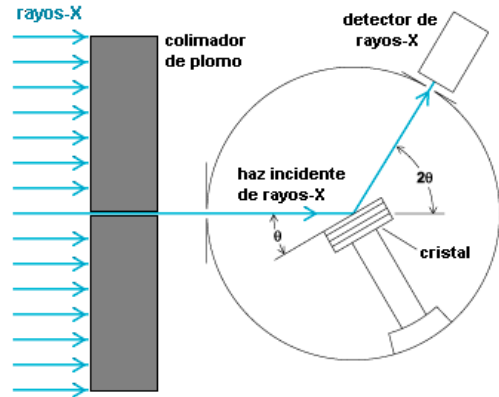


Figura 2.4: Esquema difractómetro rayos X.

En la figura 2.4 se esquematiza el difractómetro empleado indicando las condiciones de incidencia y detección que se cumplen en todo momento. El equipo empleado para estas medidas es un *Brukers D8 Advance HRXRD*<sup>6</sup>. Los rayos X empleados provienen de bombardear con electrones de alta energía un blanco de cobre, por lo tanto de longitud de onda es:

$$\lambda = 1,54060 \text{ \AA}.$$

Los patrones de difracción obtenidos para cada muestra se muestran en la figura 2.5. En ambos se observan los máximos de difracción correspondientes a los planos (00 $l$ ) de YBaCuO. Se ha utilizado la calibración disponible en el laboratorio de rayos X para esta identificación. Además, se observan en ambos casos dos picos más intensos correspondientes a las direcciones de difracción (002) y (004) correspondiente al sustrato. A partir de los picos del YBaCuO se calcula, en cada caso, el **parámetro de red fuera del plano**,  $c$ , de acuerdo con la ecuación 2.1. Se muestran los resultados obtenidos en la tabla 2.2.

Muestra	Hilo A	Hilo C
$c[\text{\AA}]$	11,91	11,72

Tabla 2.2: Parámetros de red fuera del plano de ambas muestras obtenidos del análisis XRD.

Se han obtenido unos parámetros de red algo distintos a los antes mencionados (ver valor en sección 1.3). Este hecho está relacionado con la técnica de fabricación empleada, durante el crecimiento se crean tensiones que adecuan el parámetro de red al del sustrato seleccionando deformando la celda unidad.

<sup>5</sup>X-Ray Difraccion.

<sup>6</sup>High Resolution X-Ray Diffraction.

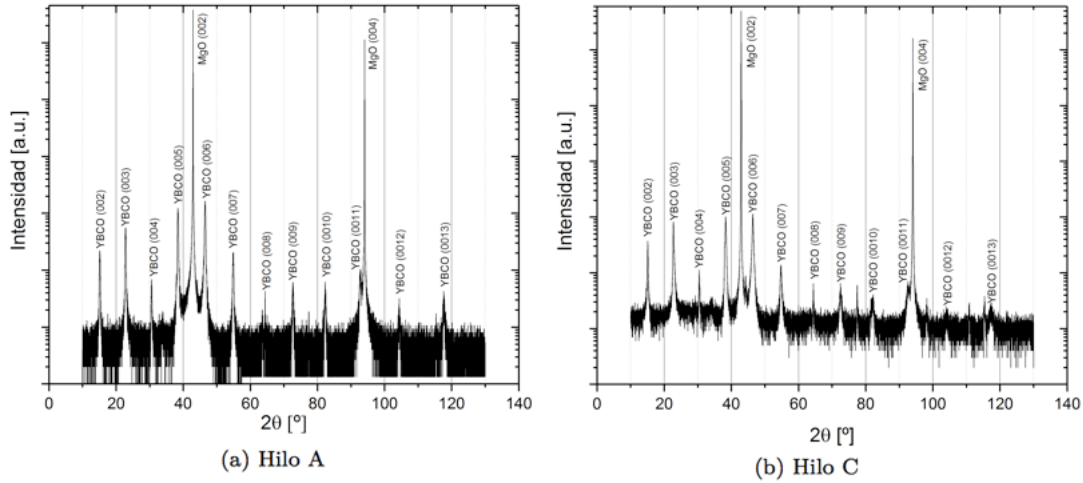


Figura 2.5: Patrones de difracción.

Se concluye que en ambos casos el crecimiento de la muestra ha sido epitaxial y en dirección paralela a la del sustrato. Tal y como se deseaba la muestra ha crecido en la dirección  $\hat{c}$  pues dispondrá del mayor número de planos de CuO que son los responsables de la superconductividad. Por último, cabe indicar que no se observan fases espúreas ni picos correspondientes a otras direcciones (salvo las correspondientes al sustrato).

### 2.3. Reflectividad de rayos X.

La reflectometría de rayos X, **XRR**<sup>7</sup>, permite caracterizar estructuras multicapa de escala nanométrica, pudiéndose determinar parámetros tales como la rugosidad, el espesor o la densidad. Esta técnica se basa en el estudio del patrón de interferencia de rayos X reflejados para ángulos alrededor del ángulo crítico. En estas condiciones los rayos X penetran en la muestra unos nanómetros, reflejando una parte de ellos cada vez que cambian de interfaz. Estos haces de rayos X parcialmente reflejados crean un patrón de interferencia con una estructura característica que se conoce como **oscilaciones de Kiessig**. Estas oscilaciones vienen descritas por los coeficientes de Fresnel. Así pues, a partir de ellas, mediante un ajuste de los resultados experimentales se obtienen los parámetros mencionados (espesor, densidad y rugosidad).

El montaje experimental es el mismo que el utilizado para la caracterización por XRD, con las mismas condiciones sobre los ángulos de incidencia y detección (fig. 2.4). Se utiliza el programa *Leptos* basado en un algoritmo de *simulated annealing* para realizar una curva de ajuste a los datos obtenidos para muestras curvas. En la figura 2.6 se muestran los patrones de interferencia obtenidos, junto con sus correspondientes curvas de ajuste. Para ambas muestras, se especifican en la tabla 2.3 los parámetros de ajuste relevantes en este trabajo obtenidos para cada una de las capas presentes en la muestra: **espesor y rugosidad**.

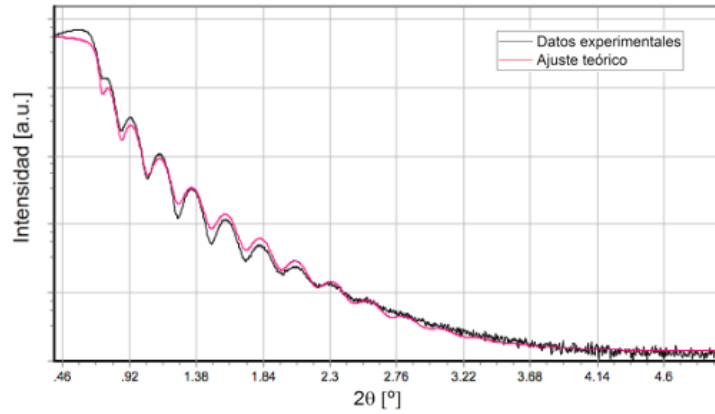
Material	Hilo A		Hilo C	
	Espesor [nm]	Rugosidad [nm]	Espesor [nm]	Rugosidad [nm]
YBaCuO	33,72	0,639	103,21	1,267
MgO	-	1,083	-	0,839

Tabla 2.3: Parámetros de ajuste XRR para ambas muestras.

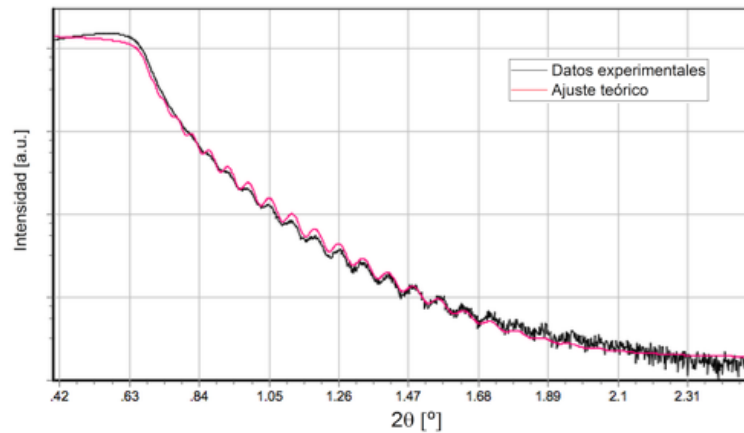
Para finalizar esta sección conviene realizar un análisis cualitativo de la forma de los patrones

<sup>7</sup>X-Ray Reflectivity.





(a) Hilo A



(b) Hilo C

Figura 2.6: Patrones de reflectividad.

obtenidos. En ambos se observa un decrecimiento exponencial de la intensidad relacionado con la rugosidad de la muestra. Por otro lado, el espesor de cada capa determina la cantidad de oscilaciones que presenta el patrón: la distancia entre los máximos es inversamente proporcional al espesor. Por esto último, esta técnica es únicamente válida para caracterizar muestras de un grosor que ronde los  $100\text{nm}$ ; suficiente para caracterizar adecuadamente las muestras de YBaCuO en estudio.

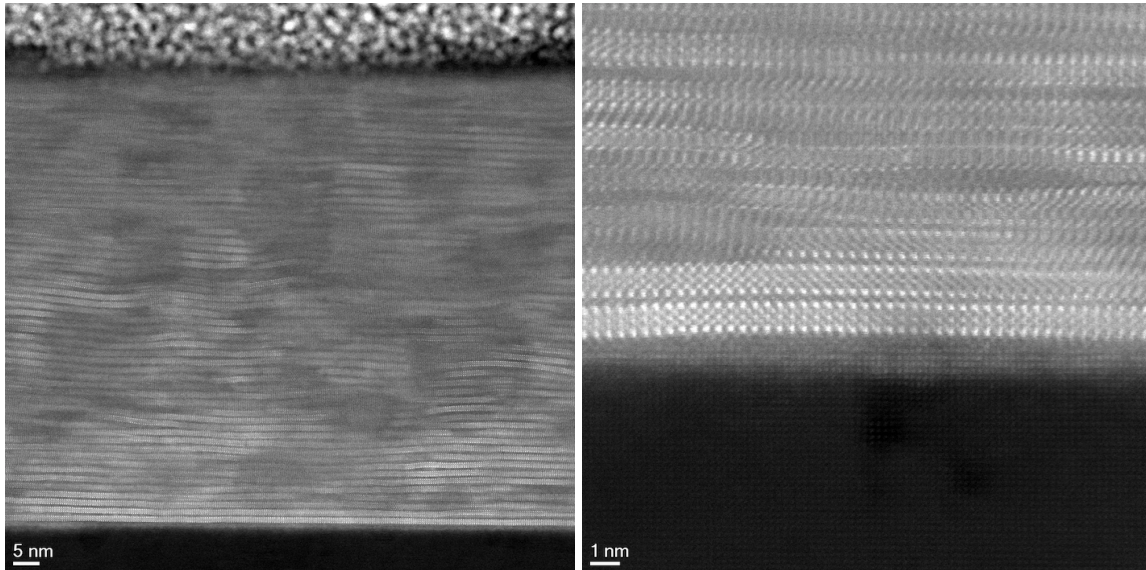
## 2.4. Microscopía electrónica.

Para terminar con la caracterización estructural se va a estudiar una de las muestras fabricadas con la técnica PLD mediante microscopía electrónica. Esto permitirá hacer un análisis espectroscópico local de la muestra, que resulta el complemento perfecto a la caracterización realizada en lo apartados anteriores. Además, esta técnica hace posible la obtención de una imagen de la muestra con un aumento y resolución que permiten la visualización de la estructura cristalina, con sus deformaciones estructurales. Se estudia cómo ha sido el crecimiento de la muestra, así como, la calidad de la intercara con el sustrato.

En este trabajo se utiliza el microscopio FEI Tecnai F30 situado en el INA que permite analizar las muestras en modo **TEM**<sup>8</sup> y **STEM**<sup>9</sup>. Para la realización de estos análisis las muestras deben

<sup>8</sup>Microscopía electrónica de transmisión.

<sup>9</sup>Microscopía electrónica de barrido.



(a) Escala 5nm

(b) Escala 1nm

Figura 2.7: Imágenes de la muestra obtenidas por un microscopio electrónico.

ser extremadamente delgadas (decenas de nanómetros), esto es lo que se conoce como lamela. La lamela estudiada en esta sección fue obtenida mediante la técnica FIB<sup>10</sup>.

La microscopía electrónica se basa en hacer incidir un haz de electrones de alta energía sobre la lamela y estudiar los fenómenos que se producen en la interacción. Por un lado, se producen distintos fenómenos como electrones secundarios, electrones retrodispersados, emisión de rayos X característicos de cada elemento de la muestra, etc. relacionados con la interacción del haz con la superficie de la muestra (STEM) y por otro, se observa un cambio en las propiedades físicas del haz al atravesar la muestra (TEM). Diferentes detectores situados alrededor del objeto en estudio recogen toda esta información, lo que permite realizar un estudio local bien detallado de la muestra.

Tanto la preparación de la muestra como las medidas se han obtenido con la ayuda de un técnico del LMA<sup>11</sup>. A lo largo de la sección se detalla el análisis realizado posteriormente. Por un lado, se analizan las imágenes obtenidas, y por otro, se realiza un análisis espectroscópico mediante la técnica EDX<sup>12</sup>, para el que se emplea el software TIA<sup>13</sup>.

#### 2.4.1. Imágenes tomadas por TEM.

En primer lugar, merece la pena contemplar alguna de las imágenes obtenidas, véase figura 2.7. El brillo de cada zona de la imagen depende del número atómico del elemento. La intensidad de los efectos que se detectan para la producción de la imagen dependen de forma proporcional con el número atómico. Así pues, en la imagen se observan con mayor brillo las zonas de elementos más pesados. En la tabla 2.4 se muestran los números atómicos de los elementos que componen la muestra y sustrato en estudio.

Elemento	Y	Ba	Cu	O	Mg
Nº atómico, Z	39	56	29	8	12

Tabla 2.4: Números atómicos de los elementos de la muestra.

<sup>10</sup> *Focused Ion Beam*.

<sup>11</sup> Laboratorio de Microcopías Avanzadas.

<sup>12</sup> Espectroscopía por dispersión de energía de rayos X.

<sup>13</sup> *Tecnaí Imaging and Analysis*.

Teniendo en cuenta estos números atómicos, se distinguen claramente dos zonas (fig. 2.7): una zona oscura correspondiente al sustrato y otra más brillante correspondiente a la capa de YBaCuO. La parte más difusa presente en la imagen 2.7a es externa al objeto en estudio, se trata de platino que se usa como protección en la preparación de la lamela. En la capa de YBaCuO (téngase en cuenta la figura 1.3) es posible distinguir a lo largo de las capas los elementos más pesados de la celda unidad, en el centro se sitúa un átomo de Itrio comprendido entre dos de Bario en la dirección longitudinal. Así pues, con estas imágenes es posible hacerse una idea muy aproximada de la celda unidad sin llegar a distinguir los otros dos elementos más ligeros. De hecho, con paciencia, hasta podrían contarse el número de capas presentes, ver imagen 2.7a donde se observa la muestra completa; tomando aproximadamente  $\sim 1nm$  por capa (ver sección 1.3) se verifica, a simple vista, la anchura de la muestra expuesta en la sección 2.1,  $\sim 70$  nm.

En ambas imágenes se distinguen perfectamente las **dislocaciones**. Dentro del crecimiento en dirección perpendicular al sustrato se observan pequeñas desviaciones de cada cadena sobre la horizontal. Estos huecos que aparecen entre cadenas resultan idóneos para el anclaje de vórtices, como ya se ha comentado con anterioridad[5]. Estas deformaciones son la clave de las especiales características relacionadas con el estado superconductor que se observa a lo largo de este trabajo, como se verá en los siguientes capítulos.

#### 2.4.2. Espectroscopía EDX.

Finalmente, se va a determinar la composición elemental de las muestras mediante la técnica de espectroscopía por dispersión de energía de rayos X. La espectroscopía EDX se basa en el estudio de los rayos X característicos emitidos por los elementos de la muestra cuando tratan de volver a su estado normal, después de haberse visto excitados por el haz de electrones del microscopio. Cada elemento no posee una única energía característica de emisión de estos rayos X, sino un conjunto. Gracias a distintos programas informáticos se puede realizar la identificación de los elementos de la muestra a partir de los picos presentes en el espectro de energía obtenido de estos rayos X.

Se observa en la figura 2.8 el espectro de rayos X obtenido para la lamela. El análisis del espectro e identificación de los elementos a partir de los picos se ha realizado con el software TIA, mencionado con anterioridad.

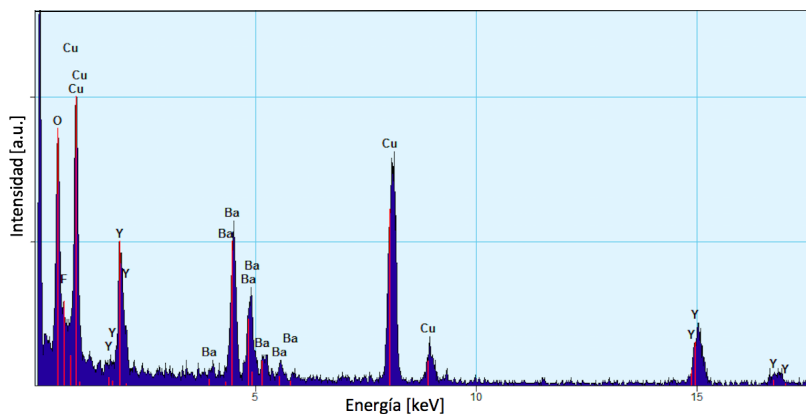


Figura 2.8: Espectro EDX.

En el espectro no se observa ningún pico significativo proveniente de un elemento no esperado. Con esto, se concluye que estas muestras generadas mediante la técnica PLD no poseen impurezas, y por tanto, cabe pensar que la propiedad más significativa relacionada con el anclaje de vórtices sean las dislocaciones.

La cantidad de oxígeno presente en las muestras es muy influyente en las propiedades superconductoras, tal y como se ha comentado con anterioridad. Este parámetro no puede ser determinado por ninguna de las técnicas empleadas en la caracterización estructural. Esto puede ser el origen de diferencias entre parámetros superconductores de las distintas muestras.

## Capítulo 3

# Caracterización eléctrica.

A lo largo de este capítulo se presentan y analizan las medidas de transporte eléctrico realizadas. Se comienza caracterizando la transición al estado superconductor en cada muestra. Tras esto se podrá estudiar su respuesta frente a campo magnético y corriente aplicados, **magnetorresistencia**, en temperaturas cercanas a la crítica. Se estudia la dependencia de estas medidas con el espesor de los hilos y con la orientación entre  $\vec{H}$  y  $\vec{J}$ . Estas medidas de magnetorresistencia resultan de interés puesto que en ellas se llega a ver reflejada la entrada individual de filas de vórtices, así como el anclaje/desanclaje de los mismos debido a las deformaciones estructurales.

Tal y como se comentó en el capítulo anterior, en este trabajo se realizan las medidas de transporte en dos hilos (A, 34 nm y C, 103 nm) y se mostrarán las medidas de un tercero (B, 64nm) tomadas en un trabajo anterior [4], para poder realizar un estudio comparativo. El grosor, como se verá, resulta un parámetro fundamental en las configuraciones estudiadas.

### 3.1. Montaje experimental.

Se utiliza un magnetoresistómetro situado y construido en el INA, controlado mediante programas informáticos desarrollados en LabVIEW. Este sistema permite realizar medidas de transporte eléctrico en función de campo magnético y temperatura.

En primer lugar, el equipo posee un calentador y un criostato de flujo continuo que permiten trabajar en un amplio rango de temperaturas, entre 4K y 400K; para las medidas realizadas se ha empleado un flujo de helio. La temperatura es determinada en cada momento mediante un termopar. Por otro lado, dispone de un electroimán, utilizado para las medidas de magnetorresistencia. En ellas, se ha variado el campo magnético entre -0,8T y 0,8T siguiendo un orden:  $0T \rightarrow 0,8T \rightarrow -0,8T \rightarrow 0T$ .

Para la caracterización eléctrica el equipo dispone de una fuente-medidora de corriente y un nanovoltímetro. La medidas de resistencia que se estudian en este capítulo se toman en la zona de transición muy cerca de la temperatura crítica y por tanto se trabaja a voltajes muy pequeños. Por este motivo, es necesario minimizar cualquier defecto de los instrumentos de medida. Para ello, se realizan medidas en los dos sentidos de corriente a lo largo de la muestra,  $|I_+| = |I_-| = I$ , y se determina la resistencia a partir de la ecuación 3.1, siendo  $V_+$  y  $V_-$  los voltajes medidos respectivamente según el sentido de I.

$$R = \left| \frac{V_+ - V_-}{2I} \right| \quad (3.1)$$

Con este procedimiento, se compensan las distintas contribuciones debidas a posibles *offsets* en los instrumentos de medida.

El portamuestras del equipo posee un goniómetro que permite orientar el hilo en distintos ángulos respecto al campo magnético. Se muestran en la imagen 3.1 las orientaciones que se han empleado en las medidas de magnetorresistencia. La corriente se aplicó siempre en la dirección longitudinal de los hilos.

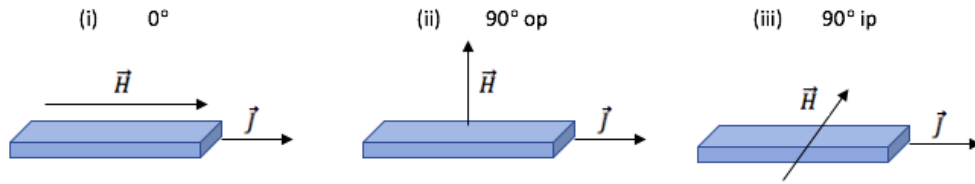


Figura 3.1: Orientaciones del campo magnético estudiadas.

Merece la pena destacar la importancia de una correcta selección de la intensidad suministrada a cada hilo. Se debe llegar a un compromiso entre la resolución en las medidas y potencia que soporta la muestra antes de sufrir daños irreparables. Para el caso de los hilos estudiados se suministra:  $15nA$  y  $20nA$ , hilos A y C respectivamente. La diferencia de espesor es grande, si al hilo más delgado se le suministraran los  $20nA$  se podría llegar a quemar.

Por otro lado, el estudio del hilo C se completó en un magnetorresistómetro muy similar al detallado en esta sección, situado en la Universidad de Santiago de Compostela. Con esto, se mostrará la reproducibilidad de los fenómenos estudiados, que es la finalidad de este protocolo. Se marcarán con un (\*) las gráficas obtenidas de las medidas tomadas por este equipo.

### 3.2. Transición al estado superconductor.

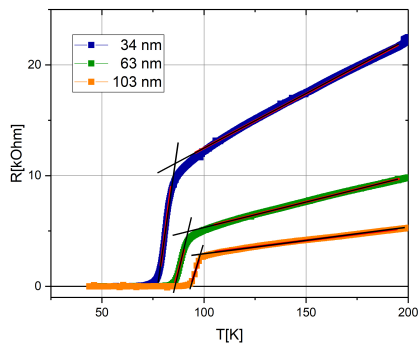


Figura 3.2: Resistencia de los hilos en función de la temperatura y los correspondientes ajustes para calcular  $T_c$ .

el brusco cambio. Esta **zona de transición** es la realmente interesante para el estudio que se detalla en este capítulo. En ella, se podría apreciar la influencia del movimiento de vórtices al aplicar campo magnético, pues éstos generarán pequeñas variaciones de resistencia que pueden ser medidas.

Es necesario calcular la temperatura crítica de cada hilo para caracterizar su transición superconductora. Convencionalmente, se ajustan linealmente por un lado, los puntos correspondientes a la zona en estado normal, y por otro, los correspondientes a la transición. El punto de corte entre ambas rectas de ajuste es, en cada caso, la temperatura crítica. Se observan en la gráfica 3.4 estos ajustes. Los valores de  $T_c$  obtenidos para cada hilo se muestran en la tabla 3.1.

A pesar de que todos los hilos están constituidos por el mismo compuesto, se observa una diferencia en sus  $T_c$ . Entre otras razones, esta diferencia se puede deber a las fluctuaciones de composición: cuanto más estrecha sea la muestra, más probable es que la densidad de corriente se tope con ellas. Por otro lado, ya se ha comentado la importancia de la cantidad de oxígeno en esta transición. La mayor relación superficie-volumen de los hilos delgados los hace más sensibles

Se comienza esta caracterización observando la transición al estado conductor de los hilos en ausencia de campo magnético. Este momento es crítico, se ve si el proceso de fabricación ha sido satisfactorio y/o si las muestras se han visto deterioradas por el paso del tiempo. Si algo hubiera ido mal, no se observaría la transición y por tanto, la muestra no sería válida. En los hilos estudiados sí se observa el estado superconductor, véase figura 3.4. Con lo que se concluye que estos hilos son buenos representantes de las películas iniciales sobre las que se realiza la caracterización estructural detallada en el capítulo 2.

En los tres casos se observan tres regiones diferenciadas en la dependencia de la resistencia con la temperatura: una zona básicamente lineal para las temperaturas más elevadas que se corresponde con el estado normal, la zona superconductora con resistencia nula, y la franja en la que se produce

Muestra	Hilo A	Hilo B	Hilo C
$T_c$ [K]	86,01	92,47	94,65

Tabla 3.1: Temperatura crítica de cada hilo.

a esto. Además, dadas las dimensiones de los hilos en estudio (se aproximan a los parámetros superconductores  $(\lambda, \xi)$ ) cualquier defecto estructural se verá reflejado con claridad en la resistencia.

Merece la pena notar que, la relación entre las resistencias de cada hilo en estado normal es el esperado. De acuerdo con la Física Clásica, la resistencia es inversamente proporcional a la sección transversal que atraviesa la intensidad ( $R \propto l/(a \cdot e)$ ). Teniendo en cuenta que la única dimensión distinta en los hilos es el espesor, se observa que la resistencia del hilo de mayor espesor es aproximadamente una tercera parte de la del más delgado. Igual que el intermedio, cuya resistencia un poco menos que la la mitad del delgado.

### 3.3. Medidas de magnetoresistencia.

A lo largo de esta sección se presentan medidas de magnetorresistencia<sup>1</sup> representativas para cada hilo. En primer lugar se estudia el **hilo A** (34 nm) en configuración  $90^\circ$  op para diferentes temperaturas cercanas a  $T_c$ . En la figura 3.3 se presentan estas medidas.

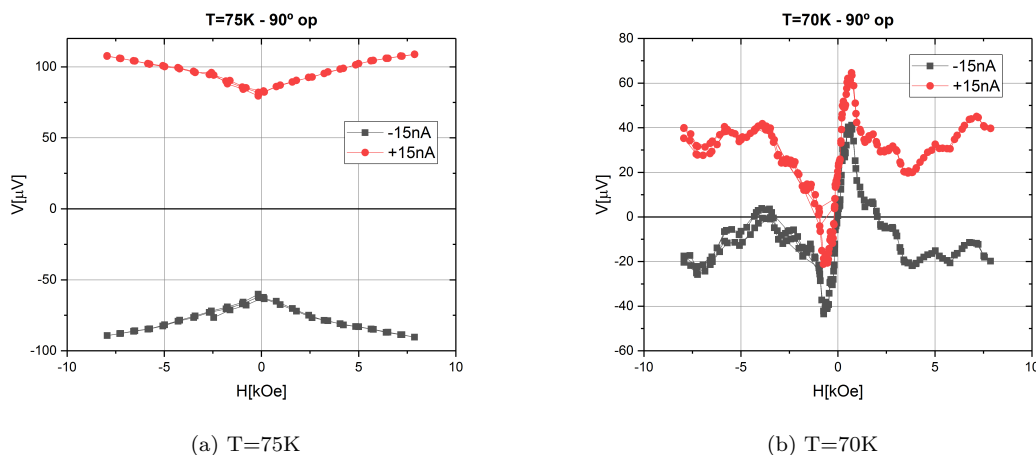


Figura 3.3: Caídas de tensión en **hilo A** (34 nm) en puntos de la transición, orientación  $90^\circ$  op.

Se observan dos comportamientos bien diferenciados en esta caída de tensión en función de la temperatura:

- (a) **Comportamiento “típico”** (fig. 3.3a). A 75 K, se observa una caída de tensión creciente con el aumento del campo magnético externo aplicado. Se corresponde con una magnetorresistencia ligeramente dependiente de este campo, mayor cuanto mayor es dicho campo. Nótese que, en campos bajos debería observarse resistencia nula. El hecho de tener resistencia no nula en ausencia de campo externo, se explica mediante fenómenos de activación térmica que conducen a la nucleación de pares vórtice/antivórtice [6]. Por otro lado, cuando se aplica campo magnético disminuye la barrera de potencial para la activación de vórtices y  $R$  aumenta.

Se ha visto en progresivas medidas realizadas al aumentar la temperatura que esta dependencia  $R(H)$  se hace menos notable, hasta hacerse  $R$  constante para el estado normal. Efec-

<sup>1</sup>Como se ha comentado con anterioridad la medidas realizadas son de tensión ( $V_+$  y  $V_-$ ), a partir de las cuales se calcula resistencia en función del campo magnético.

tivamente, es bien sabido que en un material conductor la resistencia no depende del campo magnético de forma notable en este rango.

Nótese que, como cabe esperar, se observa una fenomenología antisimétrica respecto al sentido de la corriente y simétrica respecto al campo magnético aplicado.

- (b) **Comportamiento anómalo** (fig. 3.3b). Se observan oscilaciones anómalas, que rompen este comportamiento típico, aparece **magnetorresistencia oscilante**<sup>2</sup>. No se dispone de ningún modelo teórico que explique de forma cuantitativa este fenómeno. Por tanto, a lo largo de esta sección se muestran distintas medidas en los hilos realizadas para tratar de entender, aunque sea de forma cualitativa, la naturaleza de este fenómeno.

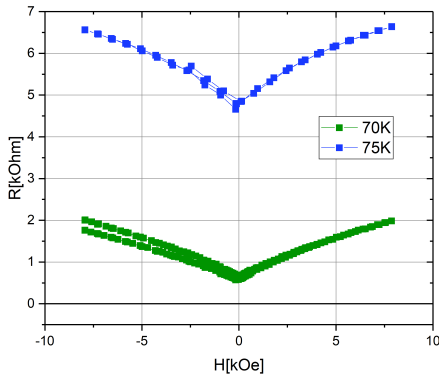


Figura 3.4: **Magnetorresistencia del hilo A** (34nm) en orientación **90° op**. R se ha obtenido a partir de los datos de la fig. 3.3 mediante la ec. 3.1.

en estudio para cada hilo. En las figuras 3.5, 3.6 y 3.7 se muestran las medidas tomadas. Se observa que la forma de estas oscilaciones está íntimamente ligada a la orientación de  $H$  y con el espesor de la muestra. El análisis más detallado de este comportamiento se realiza en la sección 3.4 en términos de la física de vórtices en películas delgadas.

A partir de estas medidas de tensión se calcula la resistencia mediante la ecuación 3.1, véase figura 3.4. En ambos casos, se recupera el comportamiento típico de la magnetorresistencia en la transición superconductor: desaparecen las oscilaciones anómalas. Habiendo excluido efectos espúreos, se puede decir que las oscilaciones en el voltaje dan cuenta de un fenómeno físico simétrico respecto al sentido de la corriente y no simétrico respecto al campo magnético aplicado. La operación  $V_+ - V_-$  — además de eliminar *offsets* del sistema de medida, invisibiliza posibles efectos físicos.

A partir de ahora, el estudio se centra en este comportamiento anómalo. Para cada orientación de la figura 3.1 se estudia la dependencia de las oscilaciones con el espesor del hilo. Para realizar una correcta comparación es necesario tener en cuenta la diferencia existente entre la  $T_c$  de cada hilo, es necesario seleccionar una  $T$  equivalente a la parte de la zona de transición

<sup>2</sup>Esta nomenclatura no debe inducir a error, las oscilaciones únicamente son visibles en las medidas de tensión (se verá a lo largo de la sección).

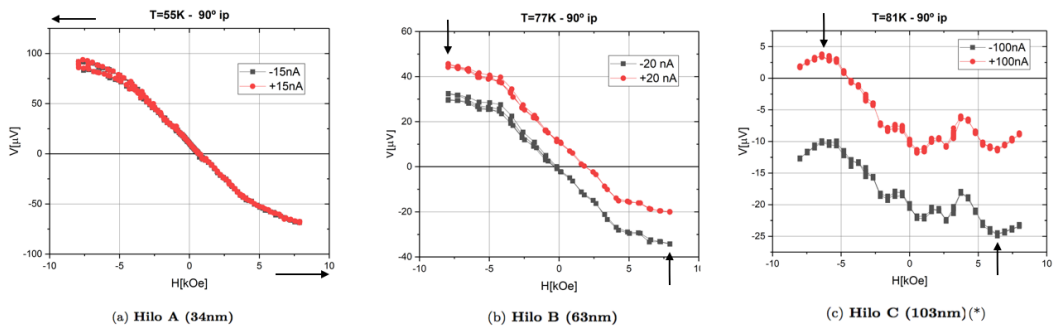


Figura 3.5: Caídas de tensión en los hilos para orientación  $90^\circ$  ip.

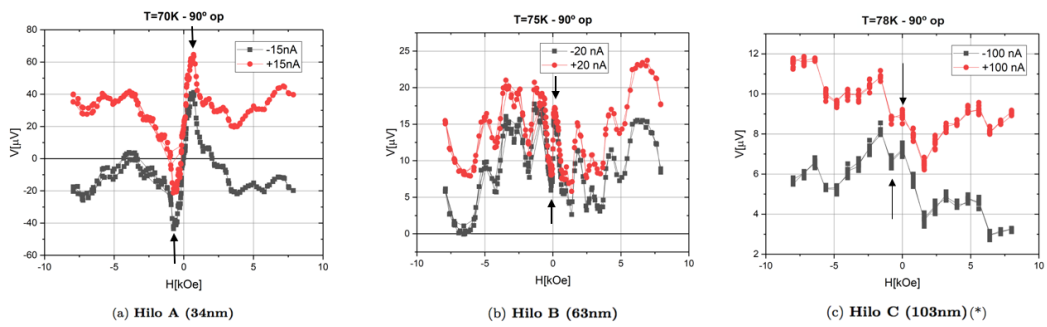


Figura 3.6: Caídas de tensión en los hilos para orientación  $90^\circ$  op.

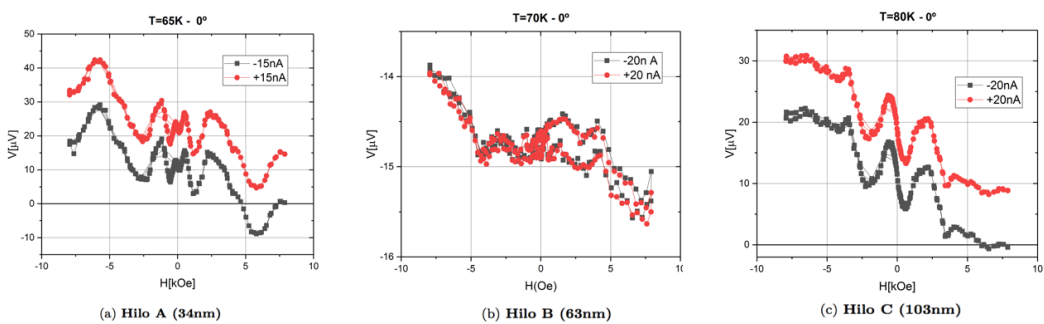


Figura 3.7: Caídas de tensión en los hilos para orientación  $0^\circ$ .



### 3.4. Propiedades de la magnetorresistencia oscilante.

Las medidas de magnetorresistencia oscilante presentadas en la sección anterior 3.3 muestran el referido fenómeno “anómalo” apreciable únicamente a temperaturas muy cercanas a la de transición, visible en un rango de campo magnético relativamente pequeño y dependiente de la orientación y del espesor de los hilos. De acuerdo con las implicaciones del movimiento de vórtices presentadas a lo largo del trabajo, y puesto que las muestras medidas poseen una notable densidad de dislocaciones que pueden actuar como centros de anclaje, cabe pensar que, el **movimiento de vórtices** con su **anclaje/desanclaje** a las deformaciones estructurales de las muestras tienen relación con esta magnetorresistencia oscilante. Se intentará verificar su plausibilidad mediante argumentos cuantitativos.

Se comenta en la sección 1.2.4 cómo se organizan los vórtices dentro del material según la red de Abrikosov. En las muestras estudiadas, con geometría de paralelepípedo muy estrecho, esta organización de vórtices sigue los siguientes pasos [7]: los primeros entran en el material organizándose en una fila central que se extiende longitudinalmente, la entrada de los siguientes reorganiza los existentes de modo que se tienen dos filas equiespaciadas entre ellas y con los bordes del material, con vórtices alternos; las sucesivas incorporaciones suponen una reorganización en esta línea. No obstante, en un material con una estructura cristalina como la del YBaCuO la sucesiva entrada de filas se hace en la línea mencionada pero con un cierto desorden; debido a las deformaciones estructurales, impurezas, la forma de los vórtices, etc. En el artículo [7] se muestra una imagen SSM<sup>3</sup> que permite visualizar cómo se produce la entrada de vórtices en varios hilos, véase imagen 3.8.

Teniendo en cuenta esto y puesto que se sospecha en la física de vórtices como causante de la magnetorresistencia anómala, cada oscilación observada en las gráficas de tensión podría corresponderse con la entrada/salida de una de estas **filas de vórtices** a la muestra. Resulta lógico pensar que el campo magnético aplicado en el que se produzca la entrada de una nueva fila de vórtices disminuya con el ancho,  $W$ , de la superficie transversal sobre la que incide  $H$ ; cuanto menor sea el ancho mayor será el campo magnético necesario para conseguir incorporar una nueva fila. La dependencia de las oscilaciones con el espesor y la orientación van en esta línea.

En el artículo [7] se estudia cómo es esta entrada de vórtices en muestras de dimensiones similares a las estudiadas en este trabajo. Expone un modelo en el que se deduce el campo magnético  $H_o$  necesario para incorporar a la muestra una nueva fila, ecuación 3.2.

$$H_o \sim 1,65 \cdot \frac{\phi_o}{W^2} \quad (3.2)$$

Teniendo en cuenta esta expresión 3.2, la entrada de vórtices en las orientaciones  $90^\circ$  ip y  $0^\circ$  depende del espesor de la misma forma en ambas, mientras que en la orientación  $90^\circ$  op es independiente de él. En todo caso, en la orientación  $0^\circ$   $\vec{J}$  es paralelo a  $\vec{H}$  por lo tanto, como se menciona en la sección 1.2.4 y de acuerdo con la ecuación 1.10 en esta configuración no debería haber disipación en el superconductor por la incorporación de estas filas<sup>4</sup>. Se muestran en la tabla 3.2 los valores teóricos a los que penetra la primera fila de vórtices siguiendo lo expuesto anteriormente.

A continuación, se estudia cada una de las orientaciones para tratar de establecer una conexión con el modelo presentado. En primer lugar, se estudia la configuración  $90^\circ$  ip (fig. 3.5). Además de los datos experimentales se indica mediante flechas la posición esperada para los máximos de acuerdo con 3.2. En este caso queda bien reflejado el efecto del espesor, cuanto menor es mayor

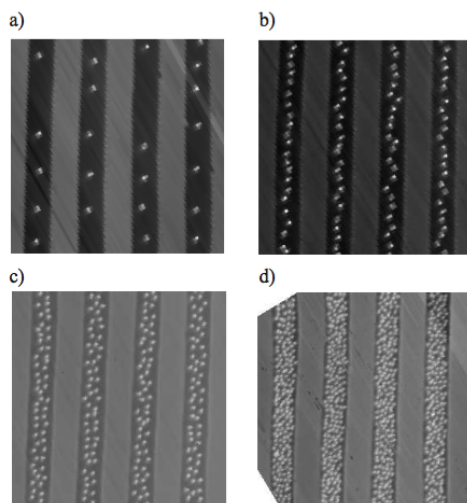


Figura 3.8: Imágenes SSM de hilos de  $35\mu m$  en estado SC bajo campo magnético aplicado: a) 0,05 Oe b) 0,1 Oe c) 0,2 Oe d) 0,5 Oe [7].

<sup>3</sup> Scanning SQUID Microscope.

<sup>4</sup> Si se piensa en un vórtice como un tubo recto.

	$H_o$ [kOe]		
	Hilo A	Hilo B	Hilo C
$0^\circ$	-		
$90^\circ$ op	0,01		
$90^\circ$ ip	29,51	8,59	3,21

Tabla 3.2: Valores teóricos según [7] de  $H_o$ .

es el campo de atrapamiento. De hecho, en el caso de Hilo A ni siquiera se llega a ver la primera oscilación, pues el equipo empleado únicamente es capaz de alcanzar  $8kOe$ . No obstante, se aprecia una tendencia hacia una oscilación para cada sentido del campo. En el caso del hilo de grosor intermedio, hilo B, tampoco se observa la oscilación en su totalidad, lo que concuerda con el valor esperado. En cuanto al hilo más grueso, se observan dos oscilaciones principales en torno al valor teórico calculado. Por otro lado, aparecen otras oscilaciones secundarias antes que ellas. En relación a esto, es bien sabido que en superconductores de tipo II los vórtices presentan perturbaciones helicoidales [8], con lo que en general, suponer que los vórtices son tubos rectos es una idealización alejada de la realidad. Así, en las medidas de magnetorresistencia puede aparecer disipación (no contemplada en la tabla 3.2) debido a la contribución de los vórtices en otras direcciones. En el caso del hilo más grueso es más probable que ocurran estas perturbaciones, con lo que se explican esas oscilaciones secundarias.

En cuanto a la orientación  $90^\circ$  op (fig. 3.6), se observa que las primeras oscilaciones se producen en los tres casos en torno a los mismos valores de campo magnético y con  $H_o < 1kOe$  (lo que concuerda con los cálculos expuestos en la tabla 3.2). Este hecho no resulta sorprendente si se piensa en los vórtices como causantes de las oscilaciones: la dimensión de espesor no juega ningún papel en el plano de incidencia del campo, así el campo de atrapamiento es el mismo para cualquier espesor (únicamente depende del ancho del hilo,  $4\mu m$ ). Este ancho es mucho mayor que cualquiera de los espesores que gobiernan el comportamiento de magnetorresistencia en las demás orientaciones, por tanto, según lo mencionado anteriormente, el campo de atrapamiento debe ser mucho menor; de acuerdo con lo observado experimentalmente.

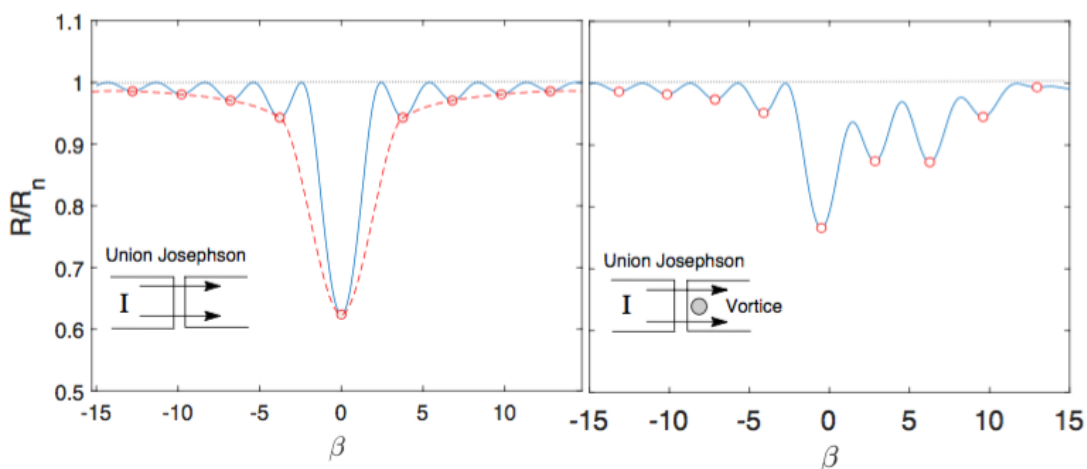


Figura 3.9: Resistencia normalizada que presenta una unión Josephson en función del campo magnético normalizado ( $\beta = BW^2/\phi_o$ ). Dos situaciones: sin campo atrapado en el interior de la unión y con un vórtice atrapado en ella.

Para finalizar, se estudia la orientación  $0^\circ$  (fig. 3.7). Según lo expuesto con anterioridad no se debería observar disipación ya que, aunque los vórtices penetren en filas en el material no se desplazarán por él ( $\vec{J} \parallel \vec{H}$ ). Sin embargo, sí se observan oscilaciones. De nuevo, son debidas a la proliferación de perturbaciones helicoidales en los vórtices. En este caso, esta contribución es mucho

más notable que en las otras dos orientaciones ya que no existe la contribución de movimiento de vórtices en la dirección principal. En las otras dos orientaciones esta aparece como modulación sobre la contribución principal y es por tanto menos apreciable.

Por el momento, las observaciones experimentales cuantitativas en relación a la posición de los extremos de las oscilaciones conducen a pensar en la física de vórtices como responsable de esta respuesta anómala de la magnetorresistencia. Sin embargo, respecto al comportamiento anómalo relacionado con las pérdidas de simetría mencionadas, no se tiene una explicación completa a partir de las medidas experimentales. Esta pérdida de simetría parece inducida por un fenómeno descrito en [9]: el atrapamiento de vórtices en las proximidades de una unión débil (o unión Josephson). Véase una dislocación como una posible unión débil. Como puede verse en la figura 3.9 las oscilaciones simétricas en  $R(H)$  adquieren un patrón irregular por presencia de un vórtice. Esta figura se ha generado utilizando la conocida expresión 3.3 propuesta por Tinkham [10]; la resistencia normalizada respecto del estado normal viene dada por una función de Bessel de la corriente crítica de la unión en función del campo.

$$\frac{R}{R_n} = [I_0(J_c(B))]^{-2} \quad (3.3)$$

Para la representación 3.9 se utiliza la dependencia de  $J_c(B)$  propuesta en [9] para el caso de tener vórtices atrapados cerca de una unión.

## Capítulo 4

# Conclusiones.

Las muestras superconductoras nanoestructuradas en forma de hilo resultan idóneas para adentrarse en fenómenos como la física de vórtices. Al ser las dimensiones de la muestra comparables a los parámetros superconductores característicos, cualquier anomalía en ellas (dislocaciones, desorientación cristalina ...) resulta de notable influencia.

La magnetorresistencia, o más bien las medidas de tensión a partir de las que se obtiene, de este tipo de muestras, presenta un comportamiento anómalo en temperaturas próximas a la zona de transición superconductor/normal. Inesperadamente, aparecen oscilaciones no simétricas respecto al campo magnético aplicado y simétricas respecto al sentido de corriente. Por esto último, se invisibilizan al obtener la resistencia mediante los protocolos habituales que “antisimetrizan” para evitar offsets experimentales. Merece la pena destacar que estas oscilaciones son dependientes del espesor del hilo y de la orientación del campo magnético.

Habiendo descartado el factor experimental como causante de la anomalía, las características mencionadas inducen a pensar en la física de vórtices como causante del fenómeno. Tras realizar un estudio cuantitativo, se tienen varias evidencias en dirección a la suposición anterior:

- **Dislocaciones.** La caracterización estructural de los hilos visibiliza la presencia de un gran número de dislocaciones en las muestras; debido a las dimensiones de las mismas éstas resultan óptimas para el anclaje de vórtices [5].
- **Extremos en la magnetorresistencia.** El cálculo del campo de atrapamiento de una fila de vórtices viene expresado en la referencia [7]. Se realizó un estudio cuantitativo de la posición de los extremos de las oscilaciones a partir de las expresiones publicadas en dicho trabajo y se observa que las primeras oscilaciones principales ocurren aproximadamente para los valores del campo característico predicho.
- **Vórtice y unión débil.** En cuanto a la pérdida de simetría en la magnetorresistencia (medidas de tensión) que aparece en el campo magnético, puede explicarse mediante el atrapamiento de vórtices en uniones débiles[9]. Las dislocaciones mencionadas pueden considerarse responsables de este fenómeno.
- **Reproducibilidad.** Finalmente, se ha reproducido el fenómeno en un equipo externo a la Universidad de Zaragoza.

En definitiva, se tienen indicios para pensar que en estas medidas anómalas de magnetorresistencia se refleja la entrada de vórtices en muestras con anclaje en deformaciones estructurales. No obstante, esto no es más que un primer acercamiento a la física de vórtices pues en muestras HTS como el YBaCuO la dinámica de vórtices es muy compleja (se produce la proliferación de perturbaciones helicoidales en los vórtices, la alta temperatura de la transición puede dar lugar a la nucleación de pares vórtice/antivórtice, etc.). Así pues, este trabajo debe considerarse un paso más en el estudio de dicha fenomenología, que puede servir de ayuda para investigaciones posteriores.

# Bibliografía

- [1] ORLANDO, T. P. y DELIN, K. A. (1991). *Foundations of applied Superconductivity*. Massachusetts: Addison-Wesley.
- [2] ABRIKOSOV, A. A. (1957). On the Magnetic Properties of Superconductors of the Second Group. *Soviet Physics JETP*. 5:1174.
- [3] FAVRE, S. *Superconductores de alta temperatura crítica: fabricación y estudio de cerámicas de PrY-123*. Tesis Doctoral. Uruguay: Universidad de la República.
- [4] ARCOS GARCÍA, E. (2017). *Estudio del movimiento de vórtices en microhilos superconductores de alta temperatura crítica*. Trabajo Fin de Máster. Zaragoza: Universidad de Zaragoza.
- [5] DEW-HUGHES D. (1974). Flux pinning mechanisms in type II superconductors. *The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical Experimental and Applied Physics*. 30:293.
- [6] SOCHNIKOV, I. *et al.* (2010). “Large oscillations of the magnetoresistance in nanopatterned high-temperature superconducting films” en *Nature Nanotechnology*. 5:516.
- [7] KUIT, K. H. *et al.* (2017). Vortex trapping and expulsion in thin-film  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  strips. 77(13):134504.
- [8] GLATZ, A. *et al.* (2016). Vortex cutting in superconductors. *Physical Review B*. 94:064505.
- [9] CLEM, J. R. (2011). “Effect of nearby Pearl vortices upon the  $I_c$  versus B characteristics of planar Josephson junctions in thin and narrow superconducting strips” en *Physical Review B*. 84:134502.
- [10] TINKHAM, M. (1988) Resistive Transition of High-Temperature Superconductors. *Physical Review Letters*. 61, 1658.