

# ENSANCHAMIENTO INDUCIDO POR LA RADIACION GAMMA DE LA FRONTERA DE LOS GRANOS EN CERAMICAS SUPERCONDUCTORAS DE YBCO

C. M. Cruz<sup>1</sup>, Y. Leyva<sup>2</sup> y A. Leyva<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear (CEADEN), Ciudad Habana, Cuba

<sup>2</sup>Universidad Central "Marta Abreu", Departamento de Física, Santa Clara, Las Villas, Cuba

## RESUMEN

Se analiza el aumento del espesor  $d$  de las juntas intergranulares débiles con la dosis de irradiación gamma mediante un modelo, según el cual durante el transporte de este tipo de radiación se intensifican en el material los movimientos difusivos de los defectos en los granos superconductores, uno de cuyos efectos es provocar indirectamente el incremento de  $d$  con el aumento del tiempo de irradiación. Mediante la aplicación del modelo propuesto a la dependencia de  $d$  con el tiempo de irradiación reportada anteriormente se estimó el valor correspondiente de la constante de difusión de los átomos de oxígeno a la temperatura ambiente, el cual resultó ser en cinco órdenes superior al valor reportado en la literatura para la difusión del oxígeno en muestras no irradiadas de YBCO a la misma temperatura. Esta diferencia se ha asociado a una notable reducción en la energía de activación de estos movimientos bajo la acción de los electrones secundarios que se generan durante el transporte de la radiación gamma en este material.

## ABSTRACT

The increase of the thickness  $d$  of the weak intergrain superconducting junctions upon gamma irradiation doses was analyzed by means of a model which takes into account an enhancement of the diffusive motions of the crystal defects in the superconducting grains caused by the transport of the gamma radiation. On this basis, as the irradiation time increases the junction thickness  $d$  rises indirectly. The value of the enhanced diffusion motions constant related to oxygen atoms determined at the room temperature on the basis of the introduced model is several orders of magnitude higher than the experimental one reported for oxygen atoms in nonirradiated YBCO ceramics samples at the same temperature. This difference is related to a decrease of the value of the activation energy of those kind of atomic movements under the action of the secondary electrons induced by the gamma radiation transport.

## INTRODUCCION

En [1,2] se ha reportado que la temperatura que presentan las muestras cerámicas de YBCO cuando son sometidas a la acción de la radiación gamma constituye un factor determinante en el conjunto de las dependencias con la dosis de exposición de sus propiedades de transporte, tanto en estado normal, como superconductor.

Por ejemplo, mientras que para una temperatura de las muestras 78 K, la radiación gamma del <sup>57</sup>Co ejerce una influencia muy débil sobre temperatura crítica de la transición superconductora  $T_c$ , la densidad de corriente crítica  $J_c$  y la resistividad eléctrica  $\rho(T)$  en el rango de dosis de exposición menores de 1Gy, para la temperatura de 300 K los efectos de esta radiación en el mismo rango de dosis de exposición ( $D_{exp}$ ) son dramáticos: la densidad de corriente crítica  $J_c$  y la transición superconductora colapsan a temperaturas por encima de 78 K, mientras que la conductividad eléctrica en el estado normal pasa de un carácter metálico a semiconductor [3]. En lo adelante designaremos por  $T_M$  la temperatura que presentan

las muestras de cerámicas superconductoras durante el proceso de irradiación.

Esta peculiar acción de la radiación gamma para  $T_M = 300$  K [3,4] sobre las propiedades de transporte de las muestras cerámicas de YBCO presuponen una acción local sobre las juntas de los granos y en particular sobre las zonas aledañas a la frontera de los granos, ya que características de tipo volumétrico o intragranulares como son la temperatura de inicio de la transición superconductora  $T_{on}$  y la intensidad con que se manifiesta el Efecto Meissner presentan una dependencia mucho más suave con la dosis de exposición.

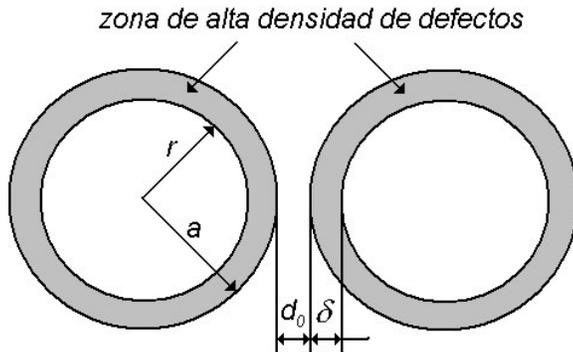
Un mecanismo de acción indirecta de la radiación gamma y dependiente de la temperatura ha sido propuesto en [1,2] para explicar la influencia peculiar de  $T_M$  en la acción de la radiación gamma sobre las propiedades de transporte en muestras cerámicas de YBCO: durante el proceso de transporte de la radiación gamma se estimulan los movimientos atómicos difusivos internos en todo el volumen de la muestra irradiada, en especial los de los átomos de oxígenos, como consecuencia de lo cual tiene lugar,

en particular, un incremento del espesor  $d$  de las juntas débiles entre los granos superconductores, evidencias de lo cual aparecen reportadas en [3].

En el presente trabajo se describe este mecanismo de acción indirecta de la radiación gamma mediante la aplicación de un modelo difusivo sencillo para explicar el aumento del espesor  $d$  de las juntas débiles superconductoras con la  $D_{exp}$  reportadas en [3], determinándose la constante de difusión  $D^o$  de los iones de oxígeno para el proceso de difusión estimulado por la radiación gamma.

### CALCULO DEL ENSANCHAMIENTO INDUCIDO EN LAS ZONAS CERCANAS A LAS FRONTERAS DE LOS GRANOS SUPERCONDUCTORES DE YBCO DEBIDO AL MOVIMIENTO DIFUSIVO DEL OXIGENO ESTIMULADO POR LA RADIACION GAMMA

#### Consideraciones básicas



**Figura 1.** Representación esquemática de la región intergranular.

En la Figura 1 se ha representado esquemáticamente la estructura de una junta débil entre dos granos superconductores, lo que se ha supuesto que poseen una forma esférica de radio  $a$ . Si se supone que el flujo de las corrientes superconductoras que pasan de uno de estos granos al contiguo, atravesando esta junta, se encuentra concentrado fundamentalmente en la zona frontal de mayor proximidad entre estos a lo largo de la dirección que pasa por sus respectivos centros, entonces el espesor  $d$  de la junta queda determinado por la expresión:

$$d = d_0 + 2\delta, \quad (1)$$

donde por  $d_0$  se ha representado el espesor del espacio intermedio de separación entre los granos superconductores, mientras que  $\delta$  representa el espesor de la zona con alta densidad de defectos, fundamentalmente de oxígeno, cercana a la frontera (ZCF) de los granos superconductores, la cual, o bien no es superconductor por encima de 77 K, o presenta propiedades superconductoras deprimidas.

Se ha supuesto que las variaciones reportadas de  $d$  con el tiempo de irradiación se deben a un aumento de  $\delta$  ( $d_0$  se considera que se mantiene constante) provocado por una intensificación de la difusión de los defectos desde la ZFC hacia el interior de los granos estimulada por el transporte de la radiación gamma en el material superconductor.

Este aumento de los movimientos difusivos se supone que ocurre durante el transporte de los cuantos gamma y de la radiación electrónica secundaria en el interior del material. En conformidad con esto, cuando cesa el transporte de la radiación, colapsa en igual medida este proceso de difusión estimulada, produciéndose sólo los movimientos difusivos interatómicos con frecuencias muchos más bajas y comparables con las que se presentan en el material no irradiado. Por esta razón la distribución de defectos resultante se puede considerar como "congelada" durante los intervalos de tiempo intermedios en los que se interrumpió la irradiación para realizar las mediciones de  $T_c$ ,  $J_c$  y  $\rho(T)$  en las muestras irradiadas. Esto permite suponer una cierta continuidad en el proceso de ensanchamiento de la ZCF en relación con el tiempo total de irradiación acumulado.

#### Ecuación de la difusión de los defectos y condiciones iniciales y de frontera

Para la descripción de este proceso se parte de la ecuación de difusión lineal de la densidad de defectos  $n_D(x,t)$  en presencia de una tasa de producción  $G_D$  de defectos constante y uniforme en el interior de cada grano superconductor, dada por la expresión:

$$\frac{\partial n_D}{\partial t} = \nabla \cdot (D^o \cdot \nabla n_D(x,t)) + G_D, \quad (2)$$

donde  $D^o$  es la constante de difusión estimulada de los defectos por la radiación gamma, con la condición de frontera:

$$\frac{\partial n_D(r = a, \vartheta, \varphi, t)}{\partial r} = 0, \quad (2.a)$$

donde se ha despreciado el flujo de defectos intergranular con respecto al intragranular sobre la base de suponer que: a) el primero toma valores en los puntos cercanos a la frontera de los granos que fluctúan alrededor de un valor medio nulo, teniendo en cuenta las propias fluctuaciones de las densidades de defectos que están presentes en las fronteras de los granos, b) el proceso de transporte de la radiación gamma no estimula los movimientos intergranulares, alcanzando la constante de difusión intragranular durante la irradiación de valores que pueden superar a los de la difusión intergranular. La condición inicial es:

$$n_D(r,0) = n_0(r, \delta_0) = \frac{2n_f}{\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{r-a}{\delta_0}\right)^2\right]$$

y  $\frac{\delta_0}{a} \ll 1$  (2.b)

donde  $\delta_0$  se ha tomado como una medida del ancho efectivo de la ZCF e igual a la dispersión cuadrática radial de la densidad de defectos con respecto al radio  $a$  de los granos y  $n_f$  es la densidad media de defectos allí presente.

### SOLUCION DEL PROBLEMA

La solución del problema antes planteado obtenida mediante el Método de Separación de Variables y teniendo en cuenta que  $\delta_0 \ll a$  es:

$$\frac{n_D(r,t)}{n_f} = \frac{\delta_0}{\delta(t)} \left[ \frac{n_0(r, \delta(t))}{n_f} \right] + \left[ \frac{G_D t}{n_f} + \frac{3(\delta_0 - \delta(t))}{a} \right],$$

(3)

donde,

$$\delta^2(t) = \delta_0^2 + D^0 \cdot t$$

(3.a)

En la expresión (3), se tiene que  $\frac{G_D t}{n_f} \ll 1$ , ya la densidad de defectos inducidos por la radiación gamma en el intervalo de tiempo  $t$  de las mediciones es muy pequeña, dado la poca variación que experimentan las propiedades intrínsecas del material, como se reporta en [3]. Teniendo esto en cuenta y la condición (2.b), resulta que el término dominante en el lado derecho de la expresión (3) es el primero, por lo que el cálculo de la dispersión cuadrática media de los valores de  $r$  con respecto al radio  $a$  del grano es precisamente  $\delta(t)$ , dado el carácter gaussiano de  $n_0(r, \delta(t))$  (el coeficiente  $\frac{\delta_0}{\delta(t)}$

es un factor que no depende de  $r$ ). Debido a esto, el espesor  $\delta$  de la ZFC después de transcurrido un tiempo  $t$  de irradiación es  $\delta(t)$ . De acuerdo con la expresión (3.a) resulta, que el cuadrado del ancho de la ZFC aumenta durante el proceso de irradiación como  $D^0 \cdot t$ , que como era de esperarse, sigue un comportamiento similar al que predice la ley parabólica de Einstein para el movimiento aleatorio de las partículas [5].

Como conclusión del estudio precedente, la variación con el tiempo de irradiación del grosor de las juntas débiles viene entonces expresado por:

$$d(t) = d_0 + 2\sqrt{\delta_0^2 + D^0 \cdot t}$$

(4)

### RESULTADOS Y DISCUSION

Para evaluar el modelo propuesto, se tomaron los valores reportados en [3] de las variaciones del grosor  $d$  de las juntas débiles superconductoras con el tiempo de irradiación (Figura 2), obtenidos a partir de las mediciones efectuadas de  $J_c$  mediante la aplicación de un modelo sencillo siguiendo a Chen [6], basado en la acción del campo interno magnético sobre las juntas de Josephson. Las muestras fueron irradiadas con una fuente isotópica de  $^{57}\text{Co}$  a la temperatura de 300 K tal como se describe en [3].

El ajuste de los datos reportados de  $d(t)$  mediante la expresión (4) se ha representado mediante la curva de trazo continuo en la Figura 2, obteniéndose para la constante de difusión  $D^0$  el valor de  $(2.5 \pm 1.5) \times 10^{-20} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$  y para el valor del grosor inicial de la ZCF,  $\delta_0 = (0.86 \pm 0.60) \times 10^{-6} \text{ cm}$ .

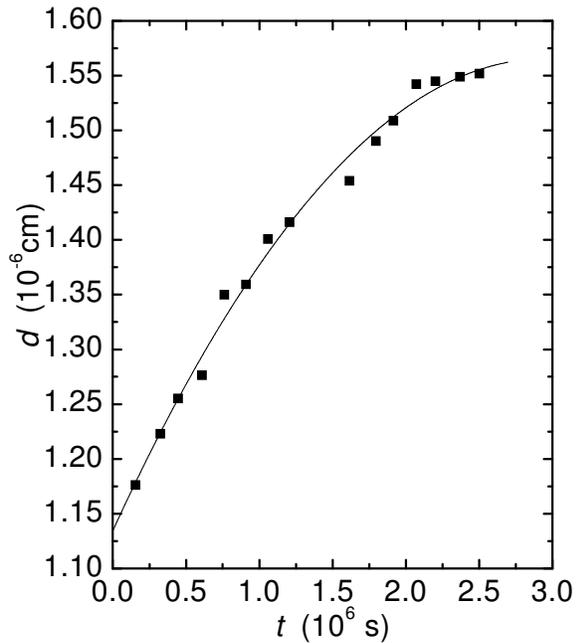


Figura 2. Ajuste de la dependencia de  $d(t)$  mediante el modelo difusivo.

Aunque los errores relativos son altos, los valores calculados para ambas variables se encuentran dentro de los órdenes correctos de magnitud correspondientes. En particular el valor de  $D^0$  se encuentra dentro de los mismos límites de variación de la constante que caracteriza los procesos de difusión intracristalina de impurezas y sustituciones intersticiales de materiales sólidos (por ejemplo, para los aceros [7]  $D \sim 10^{-18} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$  medido a 700 K). En este sentido resulta de especial interés los resultados reportados en [8] del cálculo de la dependencia con la temperatura de la constante de difusión intracristalina del oxígeno en el YBCO, dada por la expresión:

$$D(T) = 1.80 \cdot 10^{-4} \exp(-1.23 \cdot \text{eV} / kT) \quad (5)$$

Evaluando esta expresión a la temperatura ambiente se obtiene un valor para la constante de difusión del oxígeno en el YBCO de  $D(300 \text{ K}) = 0.95 \times 10^{-25} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ , el cual resulta en cinco ordenes más pequeña que  $D^0$  poniendo esto de manifiesto claramente el efecto de estimulación de la difusión que induce la radiación gamma sobre este material, partiendo, claro está, del supuesto que se está haciendo referencia a los saltos difusivos del oxígeno a las posiciones cristalográficas cercanas que estos ocupan en el YBCO, cuyas propiedades superconductoras dependen fuertemente de la estequiometría de este componente.

Si asumimos para  $D^0$  un comportamiento con la temperatura [7,9] similar al expresado por la ecuación (5):

$$D^0(T) = D^0_0 \exp(-E^0_a / kT), \quad (6)$$

y los comparamos entre ambos, resulta entonces claro, que el aumento observado en cinco ordenes de magnitud de  $D^0$  con respecto a  $D$  a la temperatura ambiente sólo es posible debido a una disminución drástica  $\Delta E_a$  de la energía de activación. Por otro lado,  $D^0_0 \cong D_0 = 1.8 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ , ya que estas magnitudes están relacionadas con la cantidad de sitios vacantes  $N_v$  cercanos hacia los cuales pueden tener lugar los saltos difusivos desde de uno dado [8,9], siendo las variaciones de  $N_v$  provocadas por la irradiación muy pequeñas debido, tanto a la cantidad limitada de sitios cristalográficos disponibles a tales efectos, como a que las variaciones resultantes observadas de las propiedades superconductoras intrínsecas son muy débiles. Sobre la base de lo anterior se puede estimar que  $\Delta E_a \approx 0.32 \text{ eV}$ .

Esta variación de la energía de activación  $\Delta E_a$  podría ser el resultado de la presencia en el material de los electrones secundarios que son creados por los cuantos gamma mediante la interacción de Compton y el Fotoefecto a energías hasta 1 MeV al interactuar con el YBCO, los cuales al abandonar sus posiciones energéticas más estables en el cristal podrían provocar el debilitamiento en los enlaces interatómicos en el material haciendo más probable que los átomos de oxígeno puedan migrar a posiciones cristalográficas vecinas mas estables. En adición a lo anterior, no se puede descartar que la

presencia de la nube de electrones secundarios en el cristal dé lugar a efectos de apantallamientos en las interacciones electrostáticas entre los iones, debilitándolas.

Por último, es necesario señalar que para el valor obtenido aquí de la constante de difusión  $D^0$  a la temperatura ambiente, su valor extrapolado a la temperatura del nitrógeno líquido es de aproximadamente  $D^0(77) = 0.53 \times 10^{-65} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ , por lo que vemos que a esta temperatura los procesos de difusión inducidos por la radiación son incomparablemente más lentos que los inducidos a la temperatura ambiente, con una incidencia mucho menor sobre el grosor de las juntas débiles de Josephson, en correspondencia con lo reportado en [1,2].

De lo anteriormente expuesto resulta, que el modelo propuesto permite una descripción adecuada de las variaciones anteriormente reportadas de  $d$  con el tiempo de irradiación mediante la ecuación (4), descansando en la hipótesis de que éstas variaciones son causadas indirectamente por el transporte de la radiación gamma a través de una intensificación de los movimientos difusivos de los átomos de oxígeno. De acuerdo con lo anterior las variaciones de  $d$  con el tiempo de irradiación no son causados principalmente por la densidad de defectos inducidos directamente por la radiación en el YBCO y en particular en las ZFC.

## CONCLUSIONES

El comportamiento del espesor de los enlaces débiles intergranulares con la dosis de irradiación se puede explicar, tanto desde el punto de vista cualitativo como cuantitativo, mediante un modelo de acción indirecta de la radiación gamma con las muestras cerámicas del material superconductor YBCO que se basa en movimientos estimulados de difusión de los defectos en los granos superconductores durante el proceso de transporte de esta radiación.

El valor de la constante de difusión asociada con este proceso estimulado por la radiación gamma a la temperatura ambiente, obtenido mediante este modelo, resulta cinco ordenes superior al valor reportado en la literatura [8] para la difusión del oxígeno en muestras no irradiadas de YBCO, achacándose esta variación a una disminución del valor de la energía de activación necesaria para realizar saltos a posiciones cristalográficas vecinas producto de un debilitamiento de los enlaces interatómicos en este material.

## REFERENCIAS

- [1] CRUZ, C. **et al.** (2001): Proceeding of International Symposium on Utilization of Accelerators, San Pablo, Brasil, 26-30/11.

- [2] LEYVA, A. (2002): "Efectos de las Radiaciones Gamma sobre cerámicas superconductoras de interés en las tecnologías nucleares", Tesis Doctoral, Facultad de Física, Universidad de La Habana.
- [3] MORA, M.; C. CRUZ; A. LEYVA; J.C. SUAREZ and D. QUESADA (1995): **Nucleus**, 18, 21.
- [4] LEYVA, A.; J.C. SUAREZ; M. MORA ; C.M. CRUZ and D. QUESADA (1992) : **Phys. Stat. Sol.** (a), 134, K29.
- [5] BOKSHEIN, B.S. (1978), "Difusión en Metales", Editorial Mir, Moscú, Capítulo 2, 44.
- [6] CHEN, L. and Y.H. ZHANG (1989): **J. Appl. Phys.**, 66, 1866.
- [7] KITTEL, CH. (1972), "Introduction to Solid State Physics", 4th Edition, Edición Revolucionaria, Instituto Cubano del Libro, Chaper 19, 646.
- [8] XIE, X.M.; T.G. CHEN and J. HUANG (1988): **Phys. Sta. Sol.** (a), 110, 415.
- [9] SCHULZE, G.E.R. (1974): "Metallphysik", Akademie-Verlag, Berlin, 192.