

UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS

CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DE TECNOLOGIA

DEPARTAMENTO DE FÍSICA

PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

***RESPOSTA MAGNÉTICA DE SUPERCONDUTORES
ESTRUTURADOS: DEPENDÊNCIA COM A
GRANULOMETRIA***

Alonso Campoi Trípodi

São Carlos – SP

2010

UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS

CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DE TECNOLOGIA

DEPARTAMENTO DE FÍSICA

PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

***RESPOSTA MAGNÉTICA DE SUPERCONDUTORES
ESTRUTURADOS: DEPENDÊNCIA COM A
GRANULOMETRIA***

Alonso Campoi Trípodi

Orientador: Prof. Dr. Wilson Aires Ortiz

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de São Carlos como parte dos requisitos para a obtenção do título de Mestre em Física.

São Carlos – SP

2010

**Ficha catalográfica elaborada pelo DePT da
Biblioteca Comunitária da UFSCar**

T864rm

Trípodi, Alonso Campoi.

Resposta magnética de supercondutores estruturados:
dependência com a granulometria / Alonso Campoi Trípodi. -
- São Carlos : UFSCar, 2010.
60 f.

Dissertação (Mestrado) -- Universidade Federal de São
Carlos, 2010.

1. Supercondutividade. 2. Nióbio. 3. Granular materials. 4.
Corrente crítica. I. Título.

CDD: 537.623 (20ª)

ALONSO CAMPOI TRÍPODI

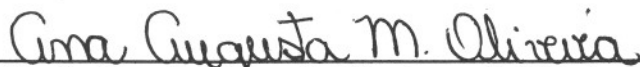
Dissertação de Mestrado submetida à Coordenação do Programa de Pós-Graduação em Física, da Universidade Federal de São Carlos, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Física.

Aprovado em: 26 de fevereiro de 2010

BANCA EXAMINADORA



Prof. Dr. Wilson Aires Ortiz (Orientador)
Universidade Federal de São Carlos – DF



Profa. Dra. Ana Augusta Mendonça de Oliveira
Universidade Federal de Santa Maria - DF



Prof. Dr. Claudio Antonio Cardoso
Universidade Federal de São Carlos – DF

Aos meus pais, Alonso e Vânia Campoi

Agradecimentos

- *Ao Prof. Dr. Wilson Aires Ortiz, pela sua orientação, paciência e dedicação. Foi um grande prazer trabalhar com um profissional tão qualificado.*
- *Aos meus pais (Alonso e Vânia) e meus irmãos (Mariana e Lucas), que tanto amo, por terem me apoiado em todos os momentos e decisões da minha vida. Sem vocês não seria possível a realização desse trabalho.*
- *À todos os meus familiares por terem me dado suporte e dicas durante essa jornada, em especial, meus avós Alonso, Yone e Ida, que sempre tiveram uma carinho muito especial comigo.*
- *À minha noiva Graziella Bento que me deu grande força na reta final desse trabalho.*
- *Aos meus grandes amigos Ângelo Morales (Guto) e Carlos Roberto (Beto) pela atenção e suporte nas horas em que precisei.*
- *Aos meus amigos do GSM: Prof. Adilson J.A. de Oliveira, Pedro Schio (Pepe), Paulo Trombini, André Varella, Rafazel Zadorosny (Zad), Alexandre Gualdi, César Deimiling, Fabiano Colauto (Coluto), Ana Augusta, Fernando de Paula, Juliana Nunes e Maycon.*
- *À alguns dos amigos que conquistei durante meus anos em São Carlos: Ariane, Ailton (Hiroshi), Helder, Marcelo.*
- *Aos técnicos: Cláudio, Ortega, Bruno e Rafael pela total prontidão e disponibilidade.*
- *Ao CNPq e a PPG-Fis, pela bolsa de mestrado.*
- *À FAENQUIL-Lorena (EEL USP) pela doação do pó de nióbio.*

"A percepção do desconhecido é a mais fascinante das experiências. O homem que não tem os olhos abertos para o misterioso passará pela vida sem ver nada."

Albert Einstein

Resumo

A máxima corrente crítica que pode ser transportada através de um supercondutor granular é, em geral, limitada pela corrente crítica dos elos fracos (EFRs) que acoplam grãos vizinhos. Para amostras cuja distribuição de correntes críticas intergranulares é suficientemente estreita, a dependência da suscetibilidade-AC com a temperatura, $\chi_{AC}(T) = \chi'(T) + i\chi''(T)$, exibe uma estrutura característica, com dois patamares em χ' e dois picos em χ'' . A ocorrência de um pico intergranular estreito evidencia um bom controle da distribuição dos EFRs no que se refere à sua capacidade de transporte, o quê, em geral, depende de parâmetros que podem ser controlados durante a produção de amostras granulares.

Para estudar a retenção de fluxo magnético em amostras supercondutoras é preciso entender o comportamento dos elos fracos. A capacidade de blindagem e aprisionamento de uma amostra supercondutora reflete-se diretamente em seu ciclo de histerese que, devidamente tratado, revela a máxima capacidade de transporte de corrente da amostra.

Neste trabalho de mestrado, utilizamos pó de nióbio para estudar a resposta magnética das regiões intergranulares de pastilhas formadas a partir da compactação do pó, tratando de compreender o papel de três parâmetros empregados na preparação da pastilha: a pressão de compactação do pó, o tamanho dos grãos e a sua dispersão. Estudamos a dependência da resposta magnética (magnetização e suscetibilidade AC) com tais parâmetros controláveis.

Constatamos que amostras preparadas com maiores pressões têm maior capacidade de aprisionamento de fluxo magnético na região intergranular e EFRs mais fortes. Por outro lado, amostras com partículas maiores têm EFRs com temperaturas críticas mais altas, ou seja, pastilhas fabricadas com partículas maiores exibem uma supercondutividade mais robusta.

Observamos o Efeito Meissner Paramagnético, na forma de reentrâncias em curvas de Magnetização em função da Temperatura. Comparando pastilhas com diferentes tamanhos de grãos, o ancoramento dos fluxos foi mais eficaz em amostras com partículas grandes e pequena dispersão de tamanho. Verificamos também o caráter metaestável de estados preparados de modo que houvesse fluxo aprisionado, comparando medidas de magnetização antes e depois da aplicação de um campo AC, que causa desprendimento parcial do fluxo magnético aprisionado em regiões intergranulares, efeito similar ao chamado *Vortex Shaking*.

Realizamos também experimentos em função do campo magnético aplicado - os chamados laços de histerese - com vistas à obtenção da dependência da corrente crítica com o campo magnético aplicado, empregando para isso um modelo de estado crítico. Verificamos que para temperaturas mais baixas a densidade de corrente crítica é maior para pastilhas com partículas maiores e pequena dispersão de tamanho.

Em resumo, nossos resultados indicam claramente que, para uma mesma granulometria, maiores pressões de compactação propiciam respostas mais diamagnéticas, bem como EFRs com transições mais estreitas e que desligam em temperaturas mais altas. Por outro lado, para uma mesma pressão de compactação em pastilhas com pequena dispersão de tamanho, partículas maiores levam à criação de EFRs mais fortes.

Abstract

The maximum critical current that a granular superconductor is able to transport is, in general, limited by the critical current of the weak-links (WLs), which connect neighbor grains. For samples whose intergranular critical current distributions are sufficiently narrow, the temperature dependence of the AC-susceptibility, $\chi_{AC}(T) = \chi'(T) + i\chi''(T)$, exhibits a characteristic structure, with two plateaus peaks in χ' and two peaks in χ'' . The occurrence of an intergranular peak evidences a good control of the WL distribution concerning current transport capability, which, in general, depends on parameters that can be controlled during production of the granular samples.

In order to study magnetic flux trapping in superconducting samples, one has to understand the weak-link behavior. The screening and trapping capabilities of a superconducting sample are reflected by the hysteresis loops which, properly treated, reveal the sample maximum capability to transport currents.

In this work we have used niobium powder to study the magnetic response of the intergranular regions of compressed pellets; we have managed to understand the role of each of three parameters employed while preparing the pellets: pressure, grain size and its dispersion. We have studied the magnetic response (magnetization and AC susceptibility) dependence on such , controllable parameters.

We noticed that samples prepared with higher pressures have larger capability to trap magnetic flux in the intergranular region and stronger WLs. On the other hand, samples with larger particles have WLs with higher critical temperatures, that is, pellets fabricated from larger particles exhibit more robust superconductivity.

We have observed the Paramagnetic Meissner Effect, in the form of reentrant curves of Magnetization as a function of Temperature. Comparing pellets with different grain sizes, flux trapping was most efficient for samples with large particles and lower size dispersion. We verified also the metastable character of states prepared in such a way that flux was retained, comparing magnetization measurements before and after application of an AC field, which causes partial release of magnetic flux from intergranular regions, an effect similar to the so-called *Vortex Shaking*.

We also conducted experiments as a function of the applied magnetic field – the hysteresis loops – aiming at obtaining the magnetic field dependence of the critical current, employing a critical state model for this task. We verified that, for lower temperatures, the critical current density is higher for pellets with larger particles and narrow size dispersion.

In summing up, our results clearly indicate that, for a certain granulometry, larger compacting pressures lead to more diamagnetic responses, as well as to WLs with narrower superconducting transitions which turn off at larger temperatures. On the other hand, for a certain compacting pressure in pellets with narrow size dispersions, larger particles lead to stronger WLs.

Sumário

Introdução	1
Propriedades dos Supercondutores	6
1.1. Teoria Fenomenológica de Ginzburg-Landau	7
1.2. Quantização do Fluxo	9
1.3. Supercondutores dos Tipos I e II	10
1.4. Modelo de Estado Crítico	13
1.4.1. Modelo de Bean	14
Resposta Magnética de Supercondutores	19
2.1 Magnetização e Suscetibilidade - AC	19
2.2 Supercondutores Granulares	22
Preparação das Amostras	28

Resultados e Discussões	32
4.1. Temperatura Crítica de Amostras Granulares	32
4.2. Suscetibilidade Magnética Dependente da Pressão.....	33
4.3. Suscetibilidade Magnética Dependente do Tamanho dos Grãos.....	36
4.4. Retenção de Fluxo Magnético	38
4.5. Densidade de Corrente Crítica.....	44
Considerações Finais.....	55
Referências Bibliográficas	58

Índice de Figuras

Figura 1. Curva de Resistividade versus Temperatura, obtida por H.K. Onnes para o mercúrio, em 1911 ¹	2
Figura 2. Um supercondutor em uma região com campo magnético (a) para $T > T_c$ (b) para $T < T_c$	2
Figura 3. Penetração do campo em uma amostra semi-infinita ⁷	7
Figura 4: Representação esquemática do comprimento de coerência (ξ) e da profundidade de penetração de London (λ_L).	11
Figura 5. Diagramas de fases do campo magnético versus temperatura para supercondutores (a) do tipo I e (b) do tipo II.....	12
Figura 6. Representação de isotermas de magnetização em função do campo magnético para supercondutores dos tipos I e II.....	12
Figura 7. (a) Primeira Imagem de uma rede de vórtices feita em Pb-at4%In (campo de 195 G e temperatura de 1.1K) pelo método <i>Bitter Decoration</i> por U. Essmann e Trauble ³⁹ (b) Imagem de <i>Microscopia de Tunelamento</i> de uma rede hexagonal de vórtices feita por H.F. Hess ⁴⁰ e colaboradores em NbSe ₂ , com campo de 1 Tesla e temperatura de 1.8K.....	13

Figura 8. Representação esquemática da penetração do campo magnético e das correntes de blindagem segundo o modelo de Bean ⁶ . (a) Penetração do campo magnético (gráfico de cima) que é mantido constante e as correntes de blindagem (gráfico de baixo). (b) Situação parecida com a anterior, porém o campo é aumentado até atingir o centro da amostra, situação (2). (c) Mostra o efeito da diminuição do campo magnético após atingir um campo $B_m > B^*$	15
Figura 9 (a) Loop de histerese de um supercondutor do tipo II com fluxo aprisionado. A linha tracejada seria a Magnetização sem fluxo aprisionado. (b) Representação do campo magnético penetrado na amostras segundo o modelo de Bean para os pontos (1) e (2) em (a) ⁶	16
Figura 10. Medida de Magnetização versus Temperatura de uma amostra granular.	20
Figura 11. Laço de histerese para uma amostra de grãos entre 20 e 25 μm e temperatura de 2 K.	21
Figura 12. Representação esquemática de uma amostra granular de nióbio e das contribuições inter e intragranulares da densidade de corrente crítica.	23
Figura 13. Magnetização de um supercondutor granular submetido a um procedimento ZFC.	24
Figura 14. Estação Experimental PPMS.	25
Figura 15. Magnetização de um supercondutor granular em um processo FCC. A reentrância nos mostra que existe fluxo aprisionado na região intragranular. (a) resposta da região intergranular (b) resposta da região intragranular (c) resposta combinada.	26
Figura 16. Magnetização de supercondutor granular em um processo FCC. O aprisionamento de fluxo pode ser tão efetivo a ponto da resposta da região intergranular ser positiva. (a) repostas da região intergranular (b) resposta da região intragranular (c) resposta combinada.	26
Figura 17. Representação esquemática dos Elos Fracos e Elos Fortes	30
Figura 18. Comparação da temperatura crítica de pastilhas com diferentes tamanhos de partículas.	33

Figura 19. Componente imaginária da suscetibilidade para diferentes pressões aplicadas. Mesmo na amostra contendo apenas pó podemos visualizar a presença de um segundo pico, associado aos EFOs.	34
Figura 20. Resposta diamagnética de amostras com grãos entre 20 e 25 μm para diferentes pressões de compactação do pó.	35
Figura 21. Curvas da componente imaginária da suscetibilidade magnética para amostras com grãos entre 20 e 25 μm e diferentes pressões. A inserção mostra uma ampliação da transição dos elos mecânicos fortes.	36
Figura 22. Curvas de suscetibilidade (imaginária) versus temperatura. Dependência da resposta para amostras com diferentes tamanhos de grãos.	37
Figura 23. Curvas de suscetibilidade (real) versus temperatura. Capacidade de blindagem do campo magnético segundo o tamanho dos grãos.	37
Figura 24. Magnetização versus temperatura em um processo de medida FCW onde o campo aplicado é o campo remanente H_{rem} na bonina do aparelho de medida.	38
Figura 25. Curvas de Magnetização com campo DC remanente e com campo DC remanente após aplicação de um campo AC. As medidas foram feitas, em amostras com partículas de tamanhos entre 20 e 25 μm com pressão uniaxial de 4000 kgf/cm^2 , por dois processos diferentes: $\text{FCW}_{H_{\text{rem}}}$ e $\text{FCC}_{H_{\text{rem}}}$	39
Figura 26. Curvas de Magnetização com campo DC remanente e com campo DC remanente após aplicação de um campo AC. As medidas foram feitas, em amostras com partículas de tamanhos entre 20 e 25 μm com pressão uniaxial de 6000 kgf/cm^2 , por dois processos diferentes: $\text{FCW}_{H_{\text{rem}}}$ e $\text{FCC}_{H_{\text{rem}}}$	40
Figura 27. Curvas de Magnetização em uma amostra de granulometria entre 20 e 25 μm , com diferentes taxas de resfriamento.	41
Figura 28. Curvas de Magnetização para diferentes amostras com mesmo tamanho de partículas (20 a 25 μm) e diferentes pressões.	42

Figura 29. Curvas de Magnetização para diferentes amostras com mesmo tamanho de partículas (20 a 63 μm) e diferentes pressões.....	43
Figura 30. Curvas de Magnetização para diferentes amostras com mesma pressão e diferentes tamanhos de partículas.....	44
Figura 31. Laços de histerese da pastilha com grãos entre 20 e 25 μm para diferentes temperaturas. Na inserção é mostrado o laço para 8 K.	46
Figura 32. Laços de histerese da pastilha com grãos entre 32 e 38 μm para diferentes temperaturas. Na inserção é mostrado o laço para 8 K.	46
Figura 33. Laços de histerese da pastilha com grãos entre 53 e 63 μm para diferentes temperaturas.	47
Figura 34. Comparação dos laços de histerese das três pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 2 K.....	47
Figura 35. Comparação dos laços de histerese das três pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 4 K.....	48
Figura 36. Comparação dos laços de histerese das três pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 6 K.....	48
Figura 37. Comparação dos laços de histerese das três pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 8 K.....	49
Figura 38. Curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado, obtidas a partir de laços de histerese tomados a diversas temperaturas (2, 4, 6 e 8 K) para a pastilha com partículas entre 20 e 25 μm . Na inserção é mostrada a curva para 8 K.	50
Figura 39. Curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado, obtidas a partir de laços de histerese tomados a diversas temperaturas (2, 4, 6 e 8 K) para a pastilha com partículas entre 32 e 38 μm . Na inserção é mostrada a curva para 8 K.	50

Figura 40. Curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado, obtidas a partir a partir de laços de histerese tomados a diversas temperaturas (2, 4 e 6 K) para a pastilha com partículas entre 53 e 63 μm	51
Figura 41. Comparação curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado para as 3 pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 2 K.	52
Figura 42. Comparação curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado para as 3 pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 4 K.	52
Figura 43. Comparação curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado para as 3 pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 6 K.	53
Figura 44. Comparação esquemática entre os espaços vazios (área hachurada) de duas amostras com baixa dispersão de tamanho de partículas.	54

Introdução

Supercondutividade é uma característica intrínseca de alguns materiais quando resfriados abaixo de certa temperatura crítica (T_c). Provavelmente a mais conhecida propriedade de um supercondutor é a sua capacidade de conduzir corrente elétrica sem resistência, porém esta não é a única. Os supercondutores apresentam também o diamagnetismo perfeito, ou seja, impedem a penetração de campo magnético em seu interior.

A primeira das propriedades supercondutoras foi descoberta em 1911 pelo físico holandês Heike Kamerlingh Onnes, enquanto estudava a dependência com a temperatura da resistividade do mercúrio, quando observou que tal resistência desaparecia quando o material era resfriado abaixo de 4.15K^1 , como mostra a Figura 1. Após a descoberta da supercondutividade no Mercúrio, a mesma propriedade foi encontrada em vários outros metais como: Estanho, Índio, Alumínio, Níóbio e outros.

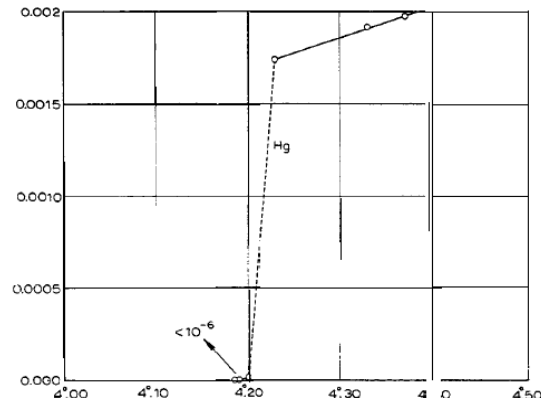


Figura 1. Curva de Resistividade versus Temperatura, obtida por H.K. Onnes para o mercúrio, em 1911¹.

Em 1933, Meissner e Ochsenfeld² descobriram outra característica igualmente importante dos supercondutores: o diamagnetismo perfeito, manifesto pelo efeito Meissner-Ochsenfeld.

Quando um supercondutor é sujeito a um campo magnético em uma temperatura T maior que T_c o campo magnético penetra em toda a amostra. Já quando a temperatura T é menor que T_c o supercondutor blinda tal campo magnético aplicado na forma de correntes, que chamamos de correntes de blindagem, e o perfil de campo fica, esquematicamente, como mostra a Figura 2.

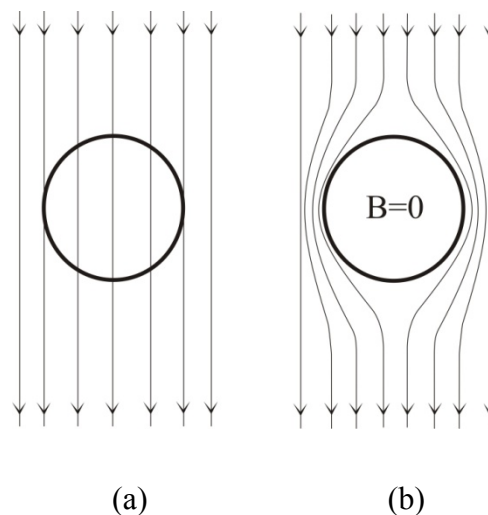


Figura 2. Um supercondutor em uma região com campo magnético (a) para $T > T_c$ (b) para $T < T_c$.

No ano de 1950, V.L. Ginzburg e L.D. Landau³ propuseram uma teoria fenomenológica, com base na teoria de Landau para transições de fase de segunda ordem, para explicar o fenômeno. Essa teoria teve uma grande importância na explicação de algumas propriedades macroscópicas dos supercondutores.

Foi somente em 1957 que Bardeen, Cooper e Schrieffer⁴ explicaram a supercondutividade e seus mecanismos através de uma teoria microscópica, conhecida como BCS. Segundo essa teoria, o comportamento dos supercondutores está associado a um acoplamento (atrativo) fraco entre elétrons, que assim formam pares. Em supercondutores metálicos os mediadores dessa interação são os fônons, inerentes à estrutura cristalina. Aos dois elétrons que se atraem devido à mediação de um fônon, damos o nome de par de Cooper, ou “superelétron”.

Como fruto de um desenvolvimento sistemático, ao longo de algumas décadas, foram produzidos materiais que apresentassem temperaturas críticas mais altas, já que seria oneroso usar a supercondutividade como uma aplicação em temperaturas de apenas alguns Kelvins. Até 1986 o material que apresentava a temperatura crítica mais alta era o composto Nb_3Ge , com $T_c=23,2K$. A partir daquele ano foi descoberto que alguns materiais cerâmicos são supercondutores até temperaturas críticas mais altas, o que deu início à era dos supercondutores de altas temperaturas críticas, ou *High-Tc* (HTSC), como são mais conhecidos.

Com o aumento da temperatura crítica dos supercondutores, estes têm se tornado importantes materiais para aplicações tecnológicas. Dentre essas aplicações podemos citar: circuitos digitais baseados em Junções Josephson, magnetos utilizados em aparelhos de Ressonância Magnética, controladores magnéticos em aceleradores de partículas e até mesmo a fabricação de bobinas para o armazenamento de energia com alto percentual de rendimento. Porém a temperatura crítica é, ainda, uma grande limitação para algumas dessas aplicações a qual é muito abaixo da temperatura ambiente, tornando o custo dessa aplicação alto e inviável. Hoje a temperatura mais alta obtida (a pressão atmosférica) está em torno de 130K, sendo possível utilizar nitrogênio líquido para resfriar o material (a temperatura do nitrogênio líquido é 77 K e o insumo pode ser adquirido comercialmente com relativa facilidade), entretanto o maior problema para aplicações não é T_c , mas sim a capacidade de transporte de corrente a 77 K, geralmente insuficiente para as necessidades práticas em sistemas de grande porte.

Segundo o seu comportamento na presença de um campo magnético, os supercondutores são classificados em dois grupos: tipos I e II. Os materiais do tipo I apresentam apenas uma transição normal-supercondutora, já os do tipo II apresentam, além dos estados normal e supercondutor, o estado misto. Tal estado é caracterizado pela penetração do campo magnético em coexistência com o estado supercondutor. O fluxo magnético penetrado no material supercondutor é quantizado e confinado espacialmente em uma região cilíndrica que recebe a denominação de vórtice ou fluxóide. Esses vórtices distribuem-se pelo supercondutor de modo a minimizar a energia, formando uma rede bidimensional, hexagonal centrada, conhecida como a Rede de Abrikosov⁵.

Em muitas das aplicações ficamos limitados, não apenas pela temperatura crítica do material, mas também por outros fatores, tais como a microestrutura da amostra, que pode representar uma severa restrição ao transporte de correntes sem dissipação. Por isso é fundamental o entendimento das propriedades magnéticas e de transporte de amostras policristalinas (granulares), defeituosas ou dotadas de impurezas.

Uma das propriedades almeçadas de um supercondutor é que este possa suportar uma elevada densidade de corrente sem passar para o estado normal, na maior temperatura possível. Dessa forma, quando tratamos de um supercondutor granular do tipo II, torna-se indispensável o estudo sistemático do estado misto, cuja fronteira constitui-se no limite de transição do estado supercondutor para o estado normal.

Uma forma de aumentar a eficiência do transporte de supercorrentes é evitando o movimento viscoso dos fluxóides (vórtices na presença de correntes de blindagem ou de transporte se movimentam arrastando seu núcleo normal pela região supercondutora, i.e. com dissipação de energia) devido ao qual o supercondutor dissipa energia no estado misto. O modo mais simples de conter o movimento viscoso dos fluxóides é inserindo centros de aprisionamento mais eficientes no material supercondutor, os quais atuam como poços de potencial atraindo fluxóides - um ou mais, dependendo de suas dimensões.

Os centros de aprisionamento são, tipicamente, defeitos estruturais, estequiométricos, ou regiões intergranulares em uma amostra granular. Um supercondutor granular pode ser descrito como uma matriz normal (ou fracamente supercondutora) embebida com grãos de um material supercondutor. Mesmo a matriz não sendo supercondutora é possível obter uma

resposta supercondutora dessa região, em decorrência do tunelamento de correntes de transporte entre grãos vizinhos.

Neste trabalho apresentamos um estudo sistemático da resposta magnética intergranular, bem como da densidade de corrente crítica, que uma amostra de nióbio granular poderia suportar, dependendo de parâmetros experimentais como o tamanho das partículas de que a pastilha é formada e a pressão de compactação do pó.

No Capítulo 1 apresentamos uma breve revisão teórica necessária para a compreensão do problema proposto; no Capítulo 2, são discutidas as respostas magnéticas (magnetização e suscetibilidade magnética) de um supercondutor granular. O método de fabricação de amostras é descrito no Capítulo 3 e os resultados obtidos são apresentados e discutidos no Capítulo 4.

Capítulo 1

Propriedades dos Supercondutores

No ano de 1935, os irmãos Fritz e Heinz London⁶, propuseram uma teoria simples que explicava o perfil do campo magnético em uma interface entre um supercondutor no estado Meissner e um material normal. Para evitar lidar com uma descontinuidade do campo magnético, os irmãos London assumiram que o módulo do campo decresce à medida que penetra no interior do supercondutor (ver Figura 3), de modo que na interface seu valor é igual ao campo aplicado e suficientemente longe da interface torna-se nulo. A distância característica desse decréscimo, λ_L , é denominada profundidade de penetração de London, dada por:

$$\lambda_L = \left[\frac{mc^2}{4\pi n_s e^2} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (1.1)$$

onde m é a massa dos superelétrons e n_s é sua densidade. Como se vê, a teoria de London só depende de n_s , e não leva em conta alguns aspectos que, na prática, influenciam a penetração do campo magnético dentro do supercondutor, como o tamanho e a pureza da amostra.

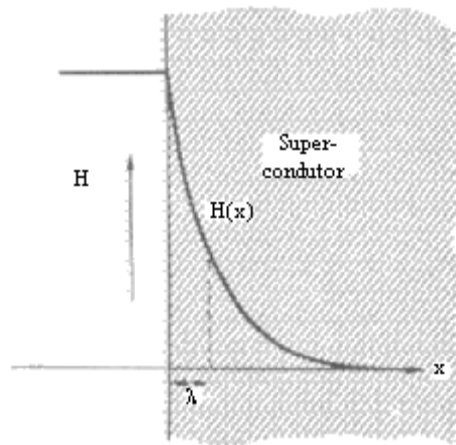


Figura 3. Penetração do campo em uma amostra semi-infinita⁷

A equação de London, que descreve a penetração do campo magnético nas proximidades da interface de um supercondutor, é dada por,

$$\nabla^2 \mathbf{B} = \frac{1}{\lambda_L^2} \mathbf{B}. \quad (1.2)$$

que também pode ser obtida por meio da teoria de Ginzburg-Landau, que discutiremos adiante.

1.1. Teoria Fenomenológica de Ginzburg-Landau

Vários fenômenos na natureza envolvem transições entre uma fase ordenada e outra desordenada. Transições de fase podem ser caracterizadas por um parâmetro de ordem apropriado, que assume um valor antes da transição e outro após. Analisando a ebulição da água, por exemplo, tal parâmetro de ordem pode ser a densidade da substância, que é mais alta quando na fase líquida do que no estado gasoso.

Em um metal normal a corrente elétrica é transportada pelos elétrons de condução e na teoria de Ginzburg-Landau³ (GL) assume-se que os portadores de corrente são os superelétrons, de massa m^* , carga e^* e densidade n_s^* , onde

$$m^* = 2m_e \quad (1.3)$$

$$e^* = \pm 2e \quad (1.4)$$

$$n_s^* = \frac{1}{2}n_s \quad (1.5)$$

O parâmetro de ordem⁶ do estado supercondutor é uma quantidade complexa, representada por:

$$\phi(\mathbf{r}) = |\phi(\mathbf{r})|e^{i\theta} \quad (1.6)$$

onde $|\phi|^2 = n_s^*$.

As propriedades termodinâmicas do estado supercondutor podem ser descritas a partir da densidade de energia livre de Gibbs, que por sua vez pode ser expandida como um funcional do parâmetro de ordem

$$G_S[\phi] = G_N + \frac{1}{V} \int d^3\mathbf{r} \left[\frac{1}{2m^*} (-i\hbar\nabla + e^*\mathbf{A})\phi^* \cdot (i\hbar\nabla + e^*\mathbf{A})\phi + \left(\frac{1}{2\mu_0}\right) B^2(\mathbf{r}) - \mu_0\mathbf{H}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{M}(\mathbf{r}) + a|\phi|^2 + \frac{1}{2}b|\phi|^4 + \dots \right], \quad (1.7)$$

onde G_N é a densidade de energia livre no estado normal e \mathbf{A} o potencial vetor. A idéia de Ginzburg para a teoria de Landau foi introduzir, na densidade de energia livre de Gibbs, uma contribuição na forma de uma expansão em série do parâmetro de ordem: $\sum c_n |\phi|^{2n} = \sum c_n (|\phi|^2)^n$.

No estado supercondutor escrevemos $a = a(T)$ e $b = b(T)$ segundo as expressões abaixo, notando que $a(T)$ é nulo para $T=T_c$ e negativo para temperaturas mais baixas,

$$a(T) \approx a_0 \left[\frac{T}{T_c} - 1 \right], \quad (1.8)$$

$$b(T) \approx b_0, \quad (1.9)$$

onde a_0 e b_0 são ambas definidas como positivas.

Minimizando a energia livre de Gibbs, segundo a derivada variacional em relação a ϕ^* , com \mathbf{A} constante, obtém-se uma equação para ϕ , conhecida como primeira equação de Ginzburg-Landau (GL),

$$\frac{1}{2m^*} (i\hbar\nabla + e^*\mathbf{A})^2 \phi + a\phi + b|\phi|^2\phi = 0. \quad (1.10)$$

Para obter a segunda equação de GL, substituindo o campo magnético pelo rotacional do potencial vetor ($\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$) e, usando o calibre de London-Landau, $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$, toma-se a derivada variacional com relação a \mathbf{A} , mantendo ϕ e ϕ^* fixos, encontrando assim a seguinte equação,

$$\frac{(\nabla \times (\nabla \times \mathbf{A}))}{\mu_0} + \frac{i\hbar e^*}{2m^*} (\phi^* \nabla \phi - \phi \nabla \phi^*) + \frac{e^{*2}}{m^*} \mathbf{A} |\phi|^2 = 0, \quad (1.11)$$

Usando a lei de Ampère, $\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{J}$, chega-se à seguinte forma da segunda equação de Ginzburg-Landau:

$$\mathbf{J} = -\frac{i\hbar e^*}{2m^*} (\phi^* \nabla \phi - \phi \nabla \phi^*) - \frac{e^{*2}}{m^*} \mathbf{A} |\phi|^2. \quad (1.12)$$

Vemos portanto que a teoria de Ginzburg-Landau é representada por duas equações diferenciais acopladas (1.10) e (1.11), envolvendo o potencial vetor e o parâmetro de ordem, que podem ser resolvidas para determinar as propriedades do estado supercondutor. Com essa teoria é possível encontrar a dependência do parâmetro de ordem ϕ com a posição dentro do supercondutor, obter a profundidade de penetração e a equação de London, mostrar que o fluxo magnético penetra no supercondutor de forma quantizada, dentre outras propriedades.

1.2. Quantização do Fluxo

A segunda equação de GL é uma relação entre a corrente no interior de um supercondutor, o parâmetro de ordem e o potencial vetor. Substituindo o parâmetro de ordem $\phi(\mathbf{r}) = |\phi(\mathbf{r})|e^{i\theta}$, referente ao estado supercondutor, na expressão (1.12) acima, temos:

$$\mathbf{J} = -\frac{i\hbar e^*}{2m^*} (\phi^* |\phi| \nabla e^{i\theta} - \phi |\phi^*| \nabla e^{-i\theta}) - \frac{e^{*2}}{m^*} \mathbf{A} |\phi|^2, \quad (1.13)$$

$$= -\frac{i\hbar e^*}{2m^*} (i\phi^* |\phi| e^{i\theta} \nabla \theta + i\phi |\phi^*| e^{-i\theta} \nabla \theta) - \frac{e^{*2}}{m^*} \mathbf{A} |\phi|^2, \quad (1.14)$$

$$= -\frac{i\hbar e^*}{2m^*} 2i |\phi|^2 \nabla \theta - \frac{e^{*2}}{m^*} \mathbf{A} |\phi|^2, \quad (1.15)$$

$$\mathbf{J} = \left[\frac{\hbar e^*}{m^*} \nabla \theta - \frac{e^{*2}}{m^*} \mathbf{A} \right] |\phi|^2. \quad (1.16)$$

Dividindo a equação (1.16) por $e^{*2}|\phi|^2/m^*$ e integrando em torno de uma curva fechada \mathcal{L} ,

$$\frac{m^*}{e^{*2}} \oint_{\mathcal{L}} \frac{\mathbf{J} \cdot d\mathbf{l}}{|\phi|^2} + \oint_{\mathcal{L}} \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l} = \frac{\hbar}{e^*} \oint_{\mathcal{L}} \nabla\Theta \cdot d\mathbf{l}. \quad (1.17)$$

Aplicando o teorema de Stokes ao segundo termo da equação (1.17), chegamos à seguinte expressão:

$$\frac{m^*}{e^{*2}} \oint_{\mathcal{L}} \frac{\mathbf{J} \cdot d\mathbf{l}}{|\phi|^2} + \oint \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S} = \frac{\hbar}{e^*} \oint_{\mathcal{L}} \nabla\Theta \cdot d\mathbf{l}. \quad (1.18)$$

Para que o parâmetro de ordem do supercondutor seja unívoco, a integral da fase no contorno fechado deve ser um múltiplo inteiro de 2π : $\oint \nabla\Theta \cdot d\mathbf{l} = 2n\pi$. Sendo assim temos:

$$\frac{m^*}{e^{*2}} \oint \frac{\mathbf{J} \cdot d\mathbf{l}}{|\phi|^2} + \Phi = n \underbrace{\frac{2\pi\hbar}{e^*}}_{\Phi_0}. \quad (1.19)$$

A equação acima demonstra que em um supercondutor do tipo II, no estado misto, o campo magnético penetra no seu interior de maneira quantizada, sendo que a soma do fluxo magnético do seu interior, Φ , com a integral de linha envolvendo a densidade de corrente crítica, é um múltiplo de uma quantidade fundamental de fluxo magnético, $\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.067 \times 10^{-15} \text{Weber}$.

1.3. Supercondutores dos Tipos I e II

Em 1933, *W. Meissner* e *R. Ochsenfeld*² demonstraram experimentalmente que um supercondutor não é apenas um condutor perfeito. No estado supercondutor (ou estado *Meissner*), além da resistividade nula, o fluxo magnético deve ser nulo no interior da amostra, que se comporta como um diamagneto perfeito. Essa exclusão total de fluxo magnético do interior de um supercondutor ficou conhecida como *Efeito Meissner*. Em termos da resposta a um campo magnético aplicado, os supercondutores classificam-se em tipo I e tipo II.

Para explicitar a diferença entre os tipos, tomamos como base uma interface normal-supercondutora (N/S), onde existe um campo magnético aplicado \mathbf{H} na região normal.

Podemos, a partir da teoria fenomenológica de Ginzburg-Landau, definir dois comprimentos característicos dos supercondutores. O primeiro deles, o comprimento de coerência (ξ), é uma medida característica do espaço necessário para que a densidade de portadores cresça de zero (na interface N/S) até uma fração significativa do seu valor máximo, que é constante no interior do supercondutor. O segundo é a profundidade de penetração de London (λ_L), que dá a escala na qual o campo magnético decai, exponencialmente, do seu valor máximo H (na interface N/S) até zero, como é mostrado na Figura 4.

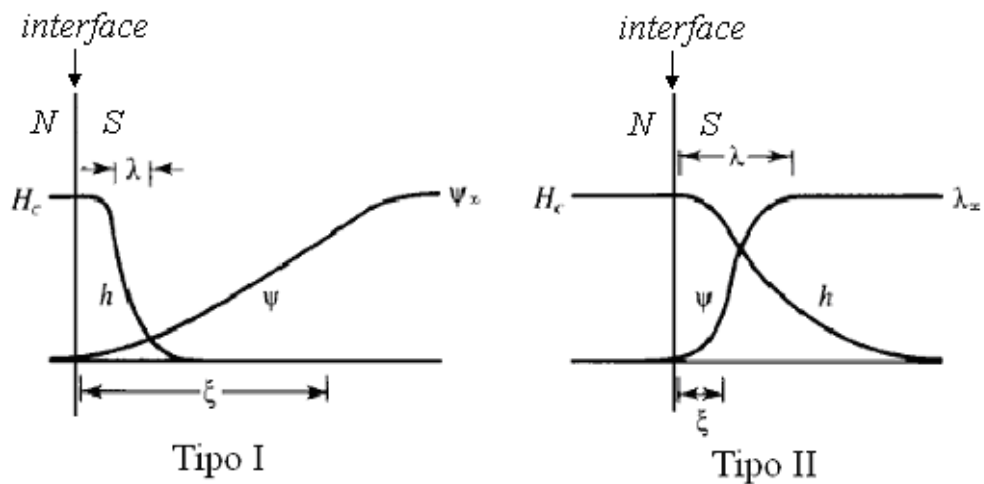


Figura 4: Representação esquemática do comprimento de coerência (ξ) e da profundidade de penetração de London (λ_L).

Abrikosov⁵ mostrou, em 1957, que a energia de superfície de um supercondutor na interface N/S é dependente de ξ e λ_L e, dependendo da razão $\kappa = \lambda_L / \xi$ (conhecida como parâmetro de Ginzburg-Landau) essa energia poderia ser positiva ou negativa, o que permite quantificar o critério de classificação dos supercondutores nos dois tipos. Para os supercondutores do tipo I, $\kappa < 1/\sqrt{2}$, já os do tipo II, têm $\kappa > 1/\sqrt{2}$.

Segundo a resposta magnética, a principal diferença entre os dois tipos de supercondutores é que os do tipo I, Figura 5 (a), excluem totalmente o fluxo magnético de seu interior. O valor máximo do campo magnético aplicado necessário para destruir o estado de diamagnetismo perfeito no interior do supercondutor é chamado campo crítico termodinâmico, $H_c(T)$.

Os supercondutores do tipo II possuem dois campos magnéticos críticos: $H_{c1}(T)$ e $H_{c2}(T)$. Além do estado Meissner completo, delimitado por $H_{c1}(T)$, existe uma região onde os estados normal e supercondutor coexistem, chamada de estado misto, como pode ser visto na Figura 5 (b). No estado misto existe a penetração parcial do campo magnético, e o que faz desse um estado particularmente interessante, é que o fluxo magnético penetrado é quantizado, ou seja, penetra em múltiplos de um quantum de fluxo fundamental (Φ_0) na forma de vórtices, que são filetes nos quais $B \neq 0$, circundados por supercorrentes que mantêm o fluxo confinado em uma pequena região de raio ξ .

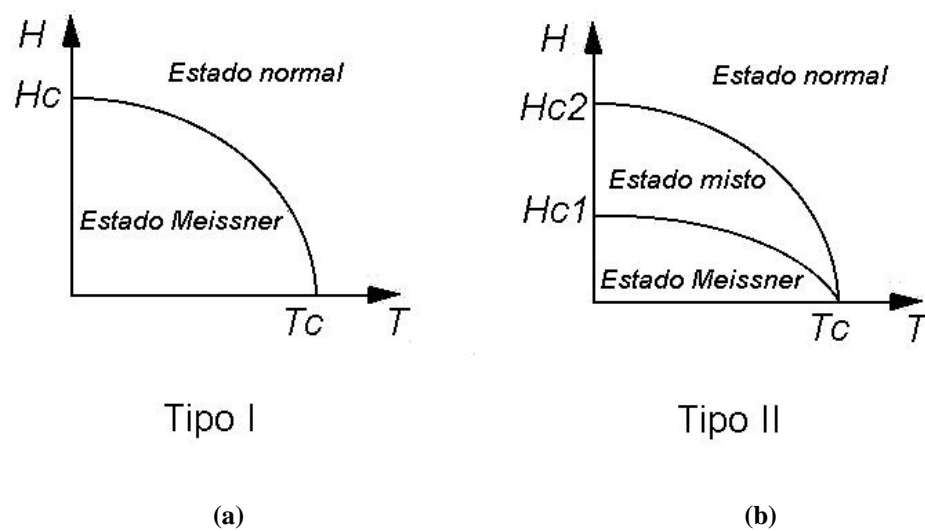


Figura 5. Diagramas de fases do campo magnético versus temperatura para supercondutores (a) do tipo I e (b) do tipo II.

A montagem de um diagrama de fases, como acima representado, decorre da análise do comportamento da magnetização em função do campo magnético em uma dada temperatura, conforme mostra a Figura 6.

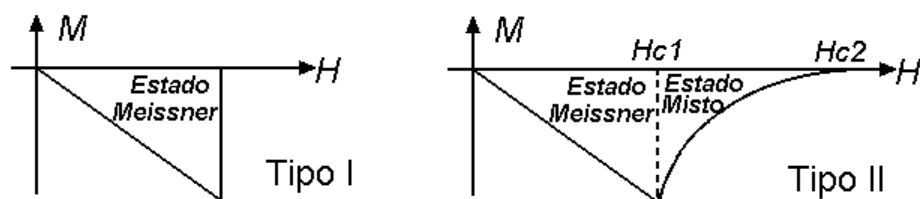


Figura 6. Representação de isotermas de magnetização em função do campo magnético para supercondutores dos tipos I e II

O vórtice consiste em um núcleo no estado normal, no qual o campo magnético é igual ao aplicado, ilhado em uma região supercondutora, em torno da qual fluem as supercorrentes que mantêm o núcleo no estado normal e a região exterior na condição de campo magnético nulo. Cada vórtice carrega um múltiplo inteiro do quantum de fluxo Φ_0 .

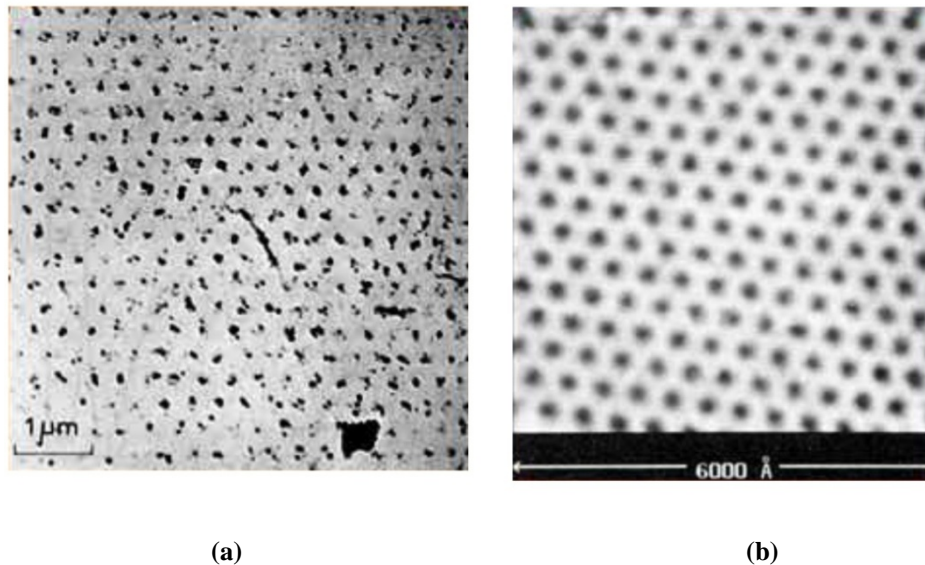


Figura 7. (a) Primeira Imagem de uma rede de vórtices feita em Pb-at4%In (campo de 195 G e temperatura de 1.1K) pelo método *Bitter Decoration* por U. Essmann e Trauble³⁹ (b) Imagem de *Microscopia de Tunelamento* de uma rede hexagonal de vórtices feita por H.F. Hess⁴⁰ e colaboradores em NbSe₂, com campo de 1 Tesla e temperatura de 1.8K.

A penetração dos vórtices no supercondutor não acontece de maneira desordenada: conforme se alojam no mar supercondutor, acomodam-se em uma rede hexagonal bidimensional, como pode ser visto na Figura 7. A previsão teórica de que os vórtices se arranjariam em uma rede ordenada foi feita por Abrikosov⁵ em 1957.

1.4. Modelo de Estado Crítico

Os Modelos de Estado Crítico (MEC) assumem que as supercorrentes presentes no material têm sempre o valor máximo - a densidade de corrente crítica, $J_c(H)$ - ou zero. O Modelo de Estado Crítico mais simples é o Modelo de Bean^{10,11}, no qual a densidade de

corrente crítica não depende do campo magnético do interior do supercondutor. Outros MECs, mais elaborados, procuram representar a situação de forma mais realista, como os modelos de Kim^{13,14} e exponencial⁴³, que levam em consideração a dependência da densidade de corrente crítica com o campo magnético no interior do supercondutor. Na Tabela 1 são mostradas as expressões para $J(B)$ de alguns dos Modelos de Estado Crítico.

Tabela 1. Exemplos de Modelos de Estado Crítico.

Modelo de Bean ¹⁰ :	$J(B) = J_c$	(1.20)
Modelo de Pinning Fixo ^{41,42} :	$J(B) = \frac{J_c}{ B(r) /B_k}$	(1.21)
Modelo de Kim ^{13,14} :	$J(B) = \frac{J_c}{1 + B(r) /B_k}$	(1.22)
Modelo Exponencial ⁴³ :	$J(B) = J_c \exp\left[-\frac{B(r)}{B_k}\right]$	(1.23)
Modelo Generalizado ^{44,45} :	$J(B) = \frac{J_c}{(1 + B(r) /B_k)^b}$	(1.24)

Nas equações da Tabela 1, J_c é a densidade de corrente crítica a campo nulo, $B(r)$ é o campo magnético dependente da posição e B_k é um parâmetro, com dimensões de campo, característico de cada modelo.

1.4.1. Modelo de Bean

O Modelo de Bean^{10,11}, desenvolvido em 1964, é um dos MECs mais utilizados pela sua simplicidade. Ele postula que a penetração do campo magnético no supercondutor ocorre de forma linear, o que implica em admitir que a região penetrada pelo campo seja percorrida por uma densidade de corrente homogênea, ou seja, a densidade não depende do campo

aplicado, sendo o seu módulo (de $J(B)$) igual à densidade de corrente crítica, J_c , que atua na blindagem magnética do supercondutor.

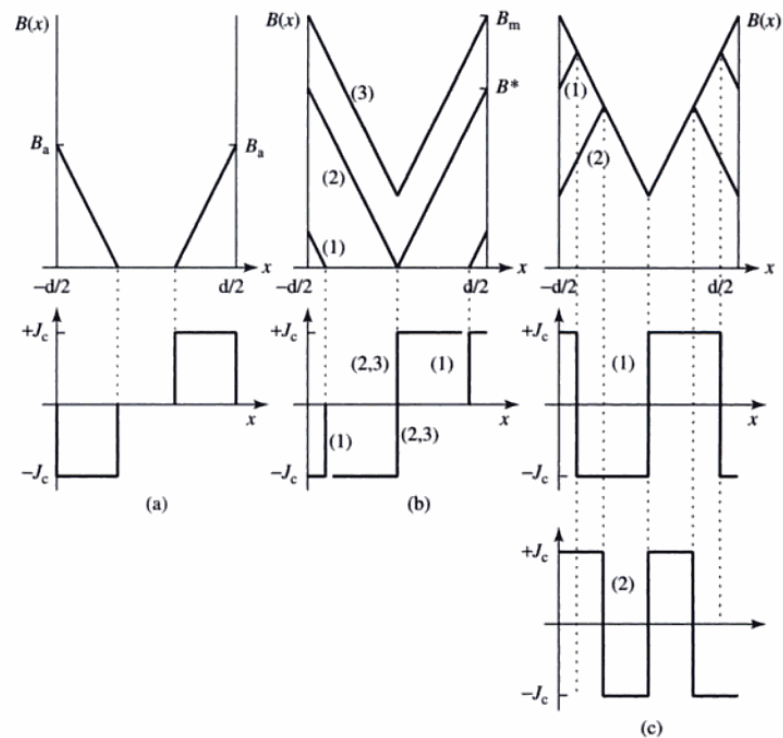


Figura 8. Representação esquemática da penetração do campo magnético e das correntes de blindagem segundo o modelo de Bean⁶. (a) Penetração do campo magnético (gráfico de cima) que é mantido constante e as correntes de blindagem (gráfico de baixo). (b) Situação parecida com a anterior, porém o campo é aumentado até atingir o centro da amostra, situação (2). (c) Mostra o efeito da diminuição do campo magnético após atingir um campo $B_m > B^*$.

Algumas situações com as quais nos deparamos frequentemente, como o aprisionamento de campo magnético por uma amostra supercondutora, podem ser explicadas mediante ao uso do Modelo de Bean. Por outro lado, este é um modelo simplista que não relaciona as correntes de blindagem com a variação do módulo do campo magnético em função da posição. A Figura 8 mostra o comportamento do campo e das correntes de blindagem, para uma amostra supercondutora cilíndrica de raio $d/2$, indicando o campo magnético B^* , definido como o menor valor de campo aplicado requerido para que haja fluxo penetrado até o centro da amostra.

Podemos encontrar uma relação entre a densidade de corrente crítica e a magnetização. Imaginemos uma medida completa de Magnetização $M(H)$, como na Figura 9

(a). Na Figura 9 é possível visualizar como a área A representa a diferença de magnetização da amostra nos pontos (1) e (2).

A diferença da magnetização é $\Delta M(H_1) = M_{\uparrow} - M_{\downarrow}$ onde M_{\uparrow} representa a magnetização na parte inferior da curva, ponto (2) e M_{\downarrow} representa a magnetização da parte superior da curva, ponto (1), ambas para o mesmo valor de campo magnético aplicado.

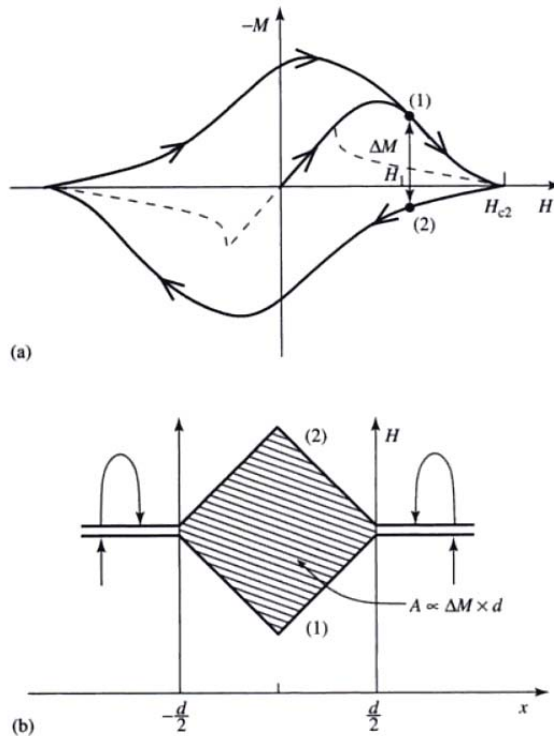


Figura 9 (a) Loop de histerese de um supercondutor do tipo II com fluxo aprisionado. A linha tracejada seria a Magnetização sem fluxo aprisionado. (b) Representação do campo magnético penetrado na amostras segundo o modelo de Bean para os pontos (1) e (2) em (a)⁶.

A relação entre a densidade de corrente crítica e a Magnetização no modelo de Bean é:

$$J_c = \frac{M(x)}{x}. \quad (1.25)$$

Daí pode-se encontrar os dois termos da magnetização e fazer a diferença para encontrar tal relação.

$$M_{\downarrow} = \frac{-1}{d/2} \int_0^{d/2} J_c x \, dx = -\frac{1}{4} J_c d \quad (1.26)$$

De maneira análoga $M_{\uparrow} = \frac{1}{4} J_c d$, sendo a diferença,

$$\Delta M(H_1) = \left(\frac{1}{4}J_c d\right) - \left(-\frac{1}{4}J_c d\right) = \frac{1}{2}J_c d. \quad (1.27)$$

Isolando J_c na expressão anterior é possível definir o valor da densidade de corrente crítica de um supercondutor em função da magnetização,

$$J_c(H) = 2 \frac{\Delta M(H)}{d} \quad (1.28)$$

Com isso é possível estimar J_c a partir de um loop de histerese. Essa magnetização é criada na amostra, pelas correntes de blindagem, para expulsar (se já está instalado) ou blindar (se ainda não está) o campo externo aplicado.

Uma maneira de melhorar o modelo de Bean, mesmo não sabendo qual é a dependência das correntes de blindagem com o campo magnético aplicado é aplicar o modelo de Bean a uma geometria específica, já que a Magnetização de uma amostra depende de sua geometria através do fator de desmagnetização.

Baseado no modelo Kim^{13,14}, Chen and Goldfarb¹² obtiveram analiticamente a curva de magnetização de uma amostra de comprimento infinito e seção reta retangular colocada em uma campo magnético paralelo ao comprimento da amostra. Eles também mostraram que esses resultados são aplicáveis para outros formatos tais como cilindros circulares. A partir de considerações de ΔM versus H , eles modificaram a expressão do modelo de Bean (1.28) para:

$$\frac{\Delta M}{d} = J_c(H) \left[1 + s \left(\frac{wJ_c(H)}{H_0+H} \right)^2 + \dots \right], \quad (1.29)$$

onde $2w$ é a aresta da base da amostra (w é o raio da amostra no caso cilíndrico), e s é um número dependente da geometria. Chen and Goldfarb encontraram $s=1/20$ para amostras com seção reta cilíndrica, e concluíram que o erro introduzido, na equação (1.29), é muito menor para amostras cilíndricas.

A fim de estimar a densidade de corrente crítica de amostras cilíndricas a partir de curvas de magnetização, Johansen and Bratsberg¹⁶, encontraram uma relação entre J_c e ΔM usando o modelo de Kim. Encontraram ainda a seguinte expressão para s :

$$s = \frac{3}{20} \frac{5-3\alpha}{3-\alpha}, \quad (1.30)$$

onde $\alpha = 1$ para o caso do cilindro. Assim, a expressão que relaciona a densidade de corrente crítica com a variação da magnetização em um loop de histerese é:

$$J_c(H) = \frac{\Delta M(H)}{w(1-\alpha/3)} \left(1 - \frac{1}{40} \frac{5-3\alpha}{3-\alpha} w^2 \times \frac{d^2}{dH^2} J_c^2(H) + \dots \right), \quad (1.31)$$

$$\cong \frac{\Delta M(H)}{w(1-\alpha/3)} \left(1 - \frac{1}{24} \frac{1-3\alpha/5}{(1-\alpha/3)^3} \times \frac{d^2}{dH^2} [\Delta M(H)]^2 + \dots \right). \quad (1.32)$$

Com a expressão acima podemos encontrar a curva de densidade de corrente crítica a partir de uma curva de magnetização versus campo magnético aplicado (laço de histerese) e assim saber como é o comportamento da densidade de corrente crítica com o campo magnético aplicado. Em nossos ajustes, verificamos que a correção referente ao termo da segunda derivada da expressão (1.32) foi muito pequena. Sendo assim utilizamos a seguinte expressão para a obtenção de tais curvas:

$$J_c(H) = \frac{\Delta M(H)}{w(1-\alpha/3)} \quad (1.33)$$

onde $\Delta M(H)$ é a diferença entre os valores da Magnetização para um dado campo aplicado no laço de histerese.

Capítulo 2

Resposta Magnética de Supercondutores

2.1 Magnetização e Suscetibilidade - AC

Com o estudo da resposta magnética de uma amostra é possível investigar características básicas, sejam elas intrínsecas ou decorrentes de defeitos devidos à maneira pela qual a amostra foi produzida. Caracterizar a resposta magnética de um material é importante para a avaliação de seu potencial para uma possível aplicação.

Geralmente utiliza-se a Magnetização volumétrica, definida como a razão entre o Momento Magnético da amostra e seu volume:

$$M_v = \frac{\mu}{V}.$$

Devido à dificuldade de medir o volume supercondutor em uma amostra granular, utilizamos aqui a Magnetização em massa, obtida dividindo-se o Momento Magnético pela massa da pastilha:

$$M = M_m = \frac{\mu}{m}.$$

Fizemos dois tipos de medidas utilizando o Momento Magnético: em uma mantivemos o campo magnético aplicado constante e variamos a temperatura. Com isso pode-se obter a resposta diamagnética do supercondutor, avaliar sua intensidade (pelo valor numérico) e a qualidade da pastilha (pela largura da transição), como é ilustrado na Figura 10; na outra, a temperatura foi mantida constante e medimos o Momento como função do campo magnético aplicado. A partir do laço de histerese isotérmico obtido pela variação do campo para cima e para baixo, com posterior inversão de sentido, é possível extrair a curva da densidade de corrente crítica do supercondutor em função de H , utilizando o MEC de Bean.

A Figura 11 apresenta um laço de histerese para uma das amostras estudadas, obtido para $T = 2 K$.

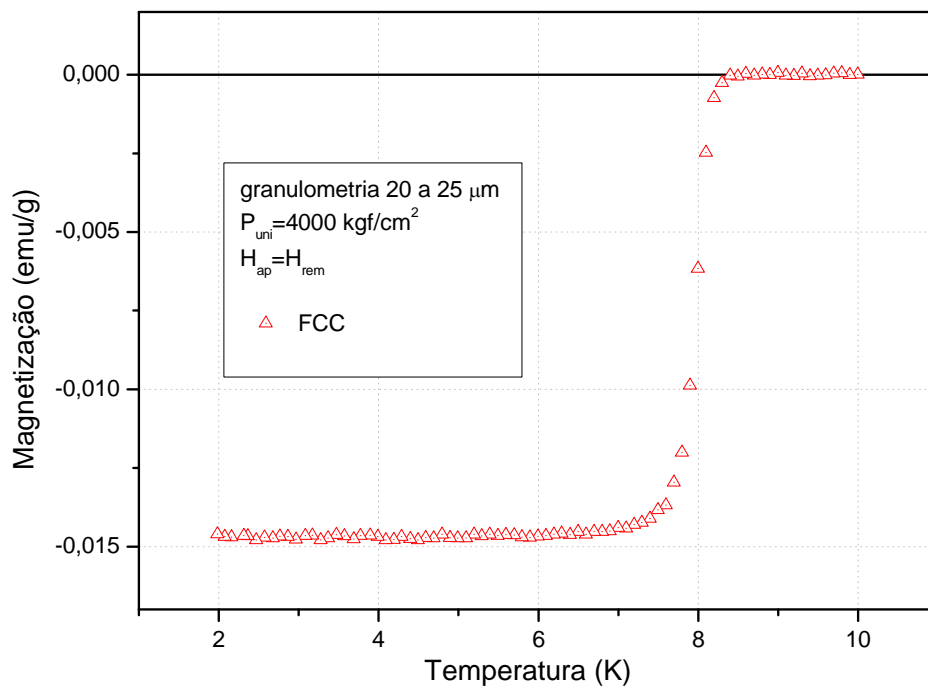


Figura 10. Medida de Magnetização versus Temperatura de uma amostra granular.

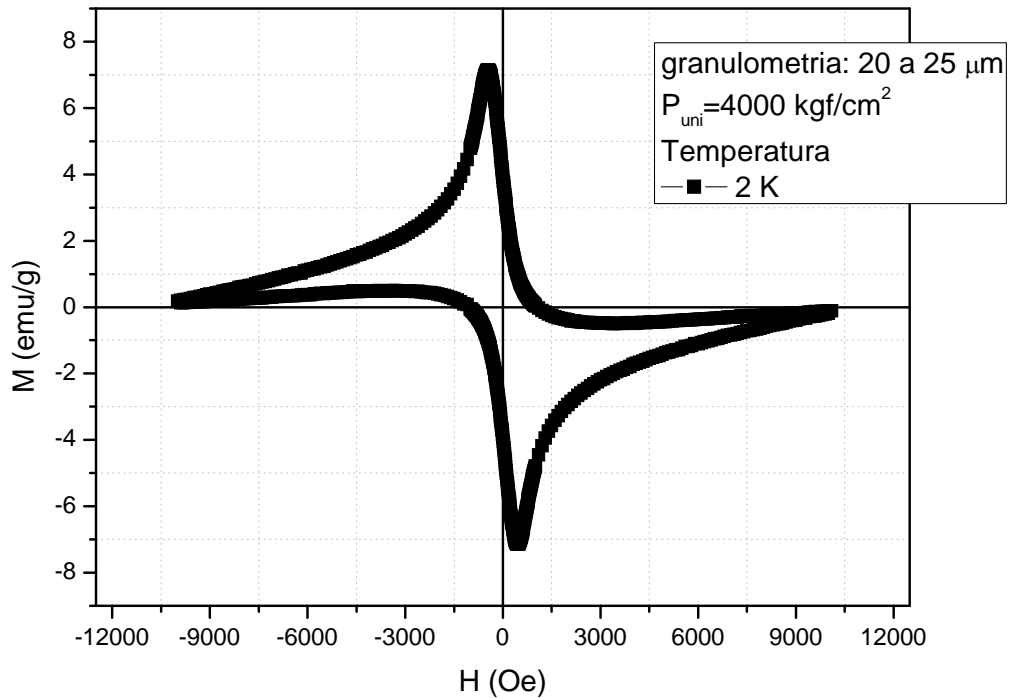


Figura 11. Laço de histerese para uma amostra de grãos entre 20 e 25 μm e temperatura de 2 K.

Outra maneira de obter informação acerca das propriedades magnéticas da amostra é através da suscetibilidade magnética, χ , definida como a derivada da magnetização M em função do campo magnético aplicado,

$$\chi = \frac{\partial M}{\partial H} \quad (2.1)$$

em outras palavras, a suscetibilidade magnética é uma medida de como a magnetização varia com uma pequena variação do campo magnético aplicado.

Para as medidas de suscetibilidade é comum aplicarmos um campo magnético H fixo e ainda empregar uma pequena excitação (campo magnético de excitação) senoidal de baixa amplitude, $h_{ac} = h_0 \text{sen}(\omega t)$. Para todas as medidas da suscetibilidade AC utilizamos a frequência de 100 Hz. Neste caso a medida resultante é chamada de suscetibilidade-AC, a qual pode ser escrita na forma complexa,

$$\chi_{AC} = \frac{\partial M}{\partial h} = \chi' + i\chi'' . \quad (2.2)$$

A retenção de fluxo magnético em materiais supercondutores no estado misto pode ser alterada se, além do campo *DC*, também for aplicado um campo magnético *AC*. Trabalhos experimentais, como os de *M. Willemijn* e colaboradores^{17,18} e de *N. Avraham* e colaboradores¹⁹, evidenciaram que, para campos magnéticos perpendiculares às amostras em forma de plaquetas, um campo magnético alternado $h_{ac} = h_0 \text{sen}(\omega t)$ perpendicular a *H* pode causar a liberação de fluxo antes ancorado em centros de aprisionamento e, conseqüentemente, uma relaxação da magnetização, que pode ser observada experimentalmente. Este efeito ficou conhecido como *vortex shaking effect*. *Brandt* e *Mikitiki*²⁰ mostraram que um campo *AC* perpendicular ou paralelo ao campo aplicado também pode favorecer o desprendimento de vórtices, o que foi confirmado em nosso grupo²¹.

Como em nossas amostras granulares temos uma grande contribuição da região intergranular, fizemos medidas de Magnetização, sem e com a aplicação do campo de excitação, para determinar se este promovia o desprendimento do fluxo magnético aprisionado na região intergranular.

2.2 Supercondutores Granulares

Supercondutores granulares podem ser vistos, de uma maneira simples, como um conjunto de grãos (partículas) supercondutores dispostos em uma matriz normal ou fracamente supercondutora, de modo que possamos interpretar o seu comportamento como uma superposição de duas contribuições. Associa-se a contribuição intragranular às propriedades supercondutoras ordinárias, intrínsecas do material. O material intergranular forma elos fracos ou Weak-Links (WLs) entre grãos vizinhos, e apresenta propriedades que são essencialmente decorrentes das características das ligações entre os mesmos, ou seja, características extrínsecas ao material granular, que dependem muito das condições de processamento das amostras. Na Figura 12 temos uma representação esquemática da blindagem de um grão (J_c^{intra}) e da blindagem de um conjunto de grãos (J_c^{inter}) através do WLs.

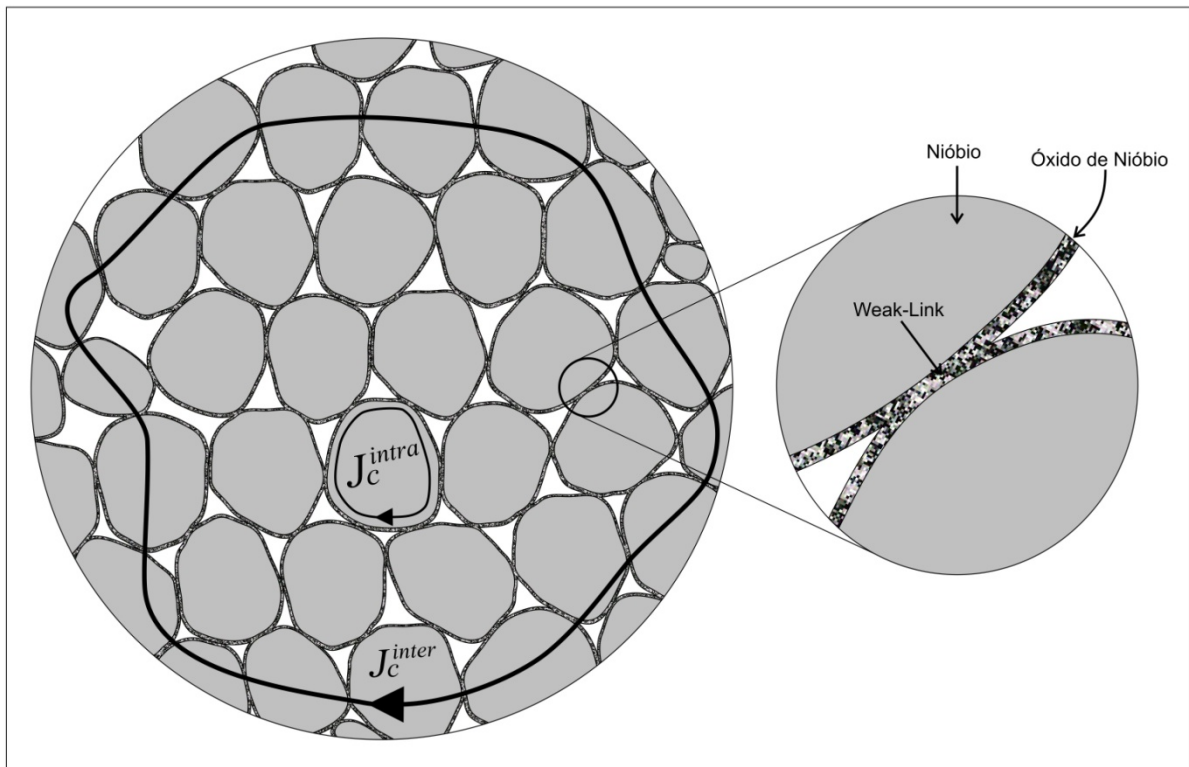


Figura 12. Representação esquemática de uma amostra granular de nióbio e das contribuições inter e intragranulares da densidade de corrente crítica.

Ao resfriarmos uma amostra supercondutora abaixo de sua temperatura crítica, na ausência de campo magnético [esse procedimento é chamado ZFC (Zero Field Cooled)] e aplicarmos um campo para realizar uma medida de Magnetização em função da Temperatura, a resposta da amostra como um todo é diamagnética, composta de uma contribuição inter e outra intragranular. Esse é um comportamento característico das amostras granulares, onde existe uma transição de dois patamares em χ' e dois picos em χ'' , um referente à resposta da região intergranular e outro à intragranular. A Figura 13 mostra esquematicamente essa composição na componente real da suscetibilidade.

Chamamos de T^* a Temperatura crítica dos WLs, i.e., a temperatura acima da qual não é possível transportar supercorrentes através dos WLs. Conforme a temperatura é aumentada e se aproxima de T^* a resposta dos WLs deve começar a diminuir e deve ser zero para $T > T^*$. Nesse ponto, a corrente necessária para blindar a amostra como um todo é maior do que a densidade de corrente crítica intergranular e com isso, regiões antes blindadas pela existência de correntes intergranulares passam a ser invadidas, progressivamente, por fluxo magnético. Quando T se aproxima de T_c , a resposta diamagnética deve se aproximar de zero até não

existirem mais correntes de blindagem e os grãos supercondutores passam para o estado normal, processo ilustrado na Figura 13.

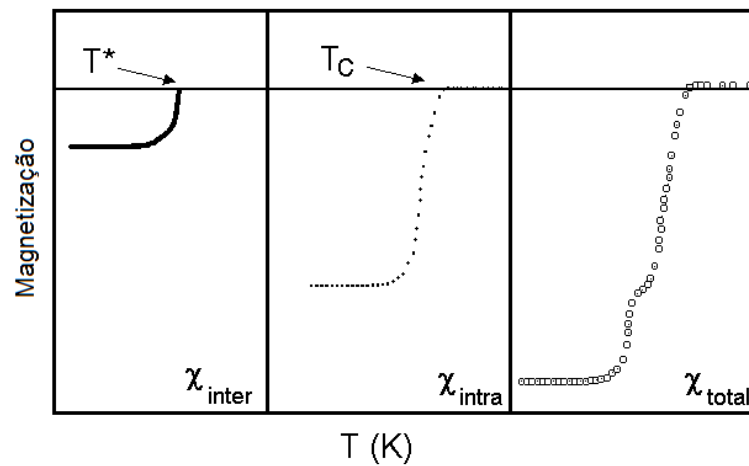


Figura 13. Magnetização de um supercondutor granular submetido a um procedimento ZFC.

Se realizarmos um procedimento FCC (Field Cooled Cooling), onde resfriamos a amostra na presença de um campo enquanto fazemos as medidas magnéticas, em um espécime livre de centros de aprisionamento de fluxo e defeitos a resposta magnética de ambos os processos deve coincidir. Para amostras reais, imperfeitas, o processo de magnetização é irreversível (respostas diferentes para ZFC e FCC) sendo que o módulo da resposta FCC é sempre menor que o da ZFC, já que parte do fluxo magnético aplicado durante o resfriamento da amostra fica retido nos centros de pinning.

Para o processo de caracterização magnética das amostras, utilizamos um equipamento PPMS (“*Physical Properties Measurement System*”, modelo 6000, Quantum Design), ilustrado na Figura 14, capaz de gerar campos magnéticos *DC* até 9 Tesla, campos de excitação de até 15 Oersted e variar a temperatura da amostra entre 1.8 K e 350 K. Como nesse sistema não é possível zerar o campo magnético remanente na bobina (sem aquecê-la), fizemos todas as medidas deste trabalho com um campo remanente, H_{rem} , tomando o cuidado de garantir valores aproximadamente iguais de uma medida para outra, i.e., aplicamos uma campo de 5000 Oe e depois o zeramos no modo oscilate. Assim, como não foi possível realizar medidas ZFC, então utilizamos o procedimento $FCW_{H_{rem}}$ (Field Cooled Warming com campo remanente aplicado) onde esfriamos a amostra na presença do campo magnético remanente e subimos a temperatura fazendo as medidas magnéticas.



Figura 14. Estação Experimental PPMS.

No estudo dos supercondutores granulares, alguns autores^{22,23,24} reportaram valores positivos de Magnetização em medidas FCC em amostras de BSCCO e esse comportamento ficou conhecido como efeito Meissner paramagnético (PME) ou efeito Wohleben (WE). O mesmo efeito foi verificado em outras amostras granulares de YBCO^{25,26}, Nd_{2-x}Ce_xCuO_y²⁷ e La₂CuO_{7-δ}²⁸. Mais tarde, Minhaj²⁹ e colaboradores observaram o mesmo efeito em amostra de Nióbio^{29,30} e realizaram uma série de experimentos em sistemas livres de gradiente de campo pois uma das possibilidades do aparecimento do efeito poderia ser devido a um problema de medida, em que o movimento da amostra em uma região de campo inhomogêneo poderia gerar um sinal paramagnético. Ainda hoje, existem várias versões para explicar tal fenômeno, inclusive a de que a resposta é uma competição entre $M < 0$ devido ao diamagnetismo dos grãos e $M' > 0$ decorrente de fluxo retido nas regiões intergranulares^{31,32,33,34,35}.

Em uma medida FCC, onde o efeito Meissner paramagnético pode ser observado, a reentrância na curva $M \times T$ indica que existe fluxo magnético aprisionado no supercondutor. Ao subirmos a temperatura o material intragranular se comporta como um supercondutor ordinário tendo uma resposta diamagnética e devido ao aprisionamento de fluxo na região intergranular (ao invés de apresentar uma resposta diamagnética) esse material tem um comportamento paramagnético, como pode ser visto na Figura 15.

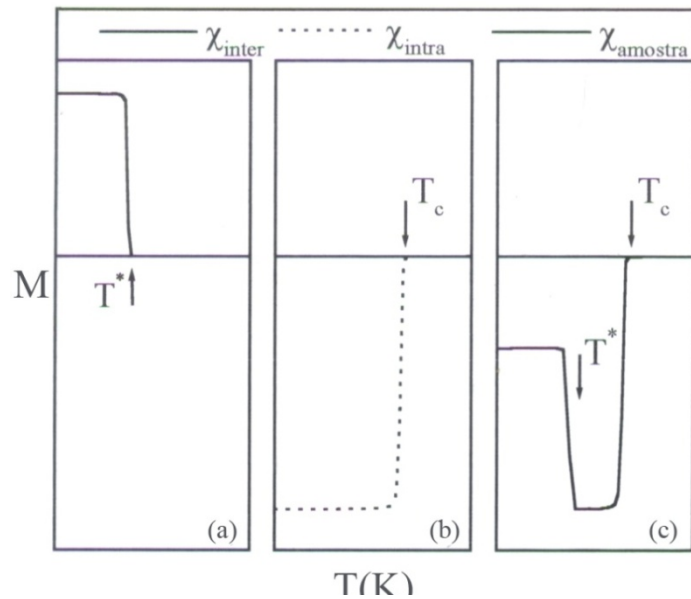


Figura 15. Magnetização de um supercondutor granular em um processo FCC. A reentrância nos mostra que existe fluxo aprisionado na região intergranular. (a) resposta da região intergranular (b) resposta da região intragranular (c) resposta combinada.

Quando a resposta paramagnética do material intergranular for maior (em módulo) do que a da região intragranular, a amostra terá um sinal positivo em baixas temperaturas e uma reentrância na região $T^* \leq T \leq T_c$, comportamento mostrado na Figura 16.

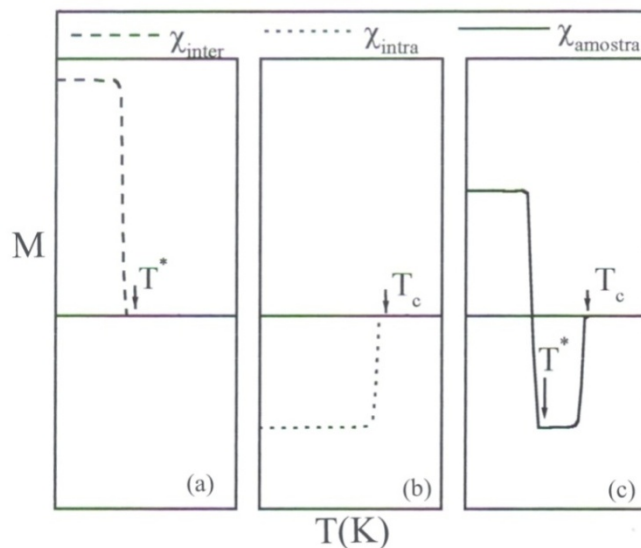


Figura 16. Magnetização de supercondutor granular em um processo FCC. O aprisionamento de fluxo pode ser tão efetivo a ponto da resposta da região intergranular ser positiva. (a) resposta da região intergranular (b) resposta da região intragranular (c) resposta combinada.

Existem três fatores que contribuem para o aprisionamento de fluxo na matriz intergranular: o módulo do campo magnético aplicado, a microestrutura da matriz intergranular, que depende do tamanho das partículas, bem como da pressão aplicada para a fabricação da pastilha. Vemos, portanto, que o efeito Meissner paramagnético só pode ser observado em condições propícias, de modo que se tais condições não forem satisfeitas a observação da reentrância pode ser dificultada.

Para comprovar que o PME está relacionado o ancoramento de fluxo, podemos fazer uma medida de referência da magnetização, em seguida aplicar um campo magnético oscilante de baixa amplitude (1 Oe) e fazer novamente a medida. Se as respostas forem idênticas, podemos concluir que não houve aprisionamento de fluxo, porém se a nova medida de magnetização apresentar uma resposta mais diamagnética comprovaremos o desprendimento do fluxo antes aprisionado.

Capítulo 3

Preparação das Amostras

Nosso objetivo é estudar o comportamento dos WLs variando a magnitude da pressão e também o tamanho dos grãos que formam as amostras. O processo de preparação das pastilhas usadas neste projeto é bem simples e consiste na união de grãos de pó de nióbio^[1] através da aplicação de uma pressão uniaxial (prensa VH Equipamentos, $P_{\text{máx}} = 4$ toneladas).

Utilizamos um conjunto de peneiras para a análise granulométrica com a finalidade de produzir amostras com diferentes características quanto aos WLs. Inicialmente o pó de Nb é colocado em uma peneira de maior abertura e, logo abaixo, fica outra de menor abertura. No nosso caso foi escolhida uma malha onde o tamanho mínimo do grão retido é de $1 \mu\text{m}$, e por agitação o pó é selecionado em diversas faixas granulométricas, com dimensão característica máxima de $63 \mu\text{m}$.

Escolhemos o nióbio para este trabalho devido à facilidade na fabricação de pastilhas com diferentes pressões uniaxiais, bem como à possibilidade de controle do tamanho de grãos mediante o uso de peneiras. Selecionamos conjuntos de pós com os seguintes tamanhos: 1 a

^[1] O pó de nióbio utilizado foi doado pela FAENQUIL-Lorena (atual Escola de Engenharia de Lorena – USP)

20 μm , 20 a 25 μm , 38 a 43 μm e 53 a 63 μm . Selecionamos também, outras classes de grãos que são combinações das classes acima: 1 a 63 μm , 20-25 μm , 20-38 μm e 20-63 μm . Outro parâmetro experimental foi a pressão de compactação do pó; na Tabela 2 estão relacionadas as amostras produzidas que foram utilizadas neste trabalho, feitas com pressões entre 2 e 8 tonf/cm².

Tabela 2. Especificações das amostras produzidas, utilizadas no trabalho.

Amostra	Granulometria (μm)	Pressão (kgf/cm ²)
1	20 a 25	0
2	20 a 25	2000
3	20 a 25	4000
4	20 a 25	6000
5	20 a 38	4000
6	20 a 38	6000
7	20 a 63	4000
8	20 a 63	6000
9	32 a 38	0
10	32 a 38	4000
11	53 a 63	0
12	53 a 63	4000
13	1 a 63	0
14	1 a 63	4000

Após a seleção do tamanho dos grãos, o pó é colocado em um molde cilíndrico entre dois pistões e então prensado uniaxialmente de modo a formar uma amostra cilíndrica com as seguintes dimensões: raio = 4 mm; altura ~ 2 mm (a altura da amostra depende da quantidade de pó colocada no molde, entretanto, como a massa de pó pode variar de uma amostra para outra, não se pode garantir exatamente a altura da mesma). Vale ressaltar que o nióbio é um metal duro e o que promove a união dos grãos é a camada de Óxido de Nióbio que se forma em sua superfície quando em contato com o oxigênio da atmosfera. Verificamos que para

pressões uniaxiais menores que 2000 kgf/cm^2 não é possível formar uma pastilha, pois esta não adquire rigidez mecânica suficiente e se desfaz ao sair do molde. O material intergranular, no caso das amostras de nióbio, é formado por finas camadas de óxidos presentes na superfície dos grãos: NbO , NbO_2 e Nb_2O_5 ³⁶.

É importante observar que o nióbio é um metal que nunca é encontrado livre na natureza sendo purificado por um processo químico específico. Após a purificação, coloca-se o nióbio em uma atmosfera com pressão de gás de hidrogênio, que penetra na rede cristalina do nióbio, fragilizando-o. A partir daí faz-se o processo de moagem quebrando as partes fragilizadas para a obtenção do pó. Por fim, o pó passa por outro processo para a retirada do H_2 de seus interstícios.

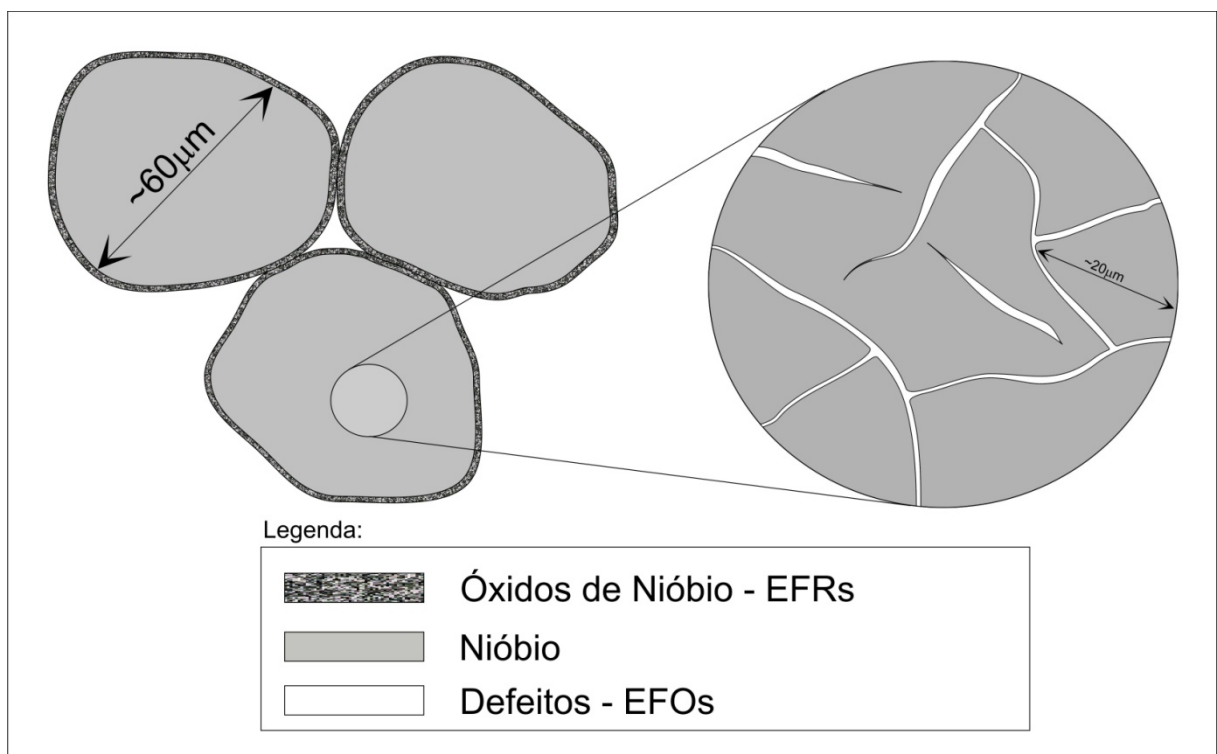


Figura 17. Representação esquemática dos Elos Fracos e Elos Fortes

Como veremos no próximo capítulo, algumas curvas de $\chi_{AC} \times T$ apresentam três transições supercondutoras: uma é referente à região intragranular, característico ao pó de Nióbio; outra deve-se a “defeitos” na fabricação do pó, pois no momento da moagem nem todos os pontos fragilizados se quebram fazendo com que, nos grãos maiores, possam persistir defeitos, os quais chamamos de Elos Mecânicos Fortes (EFOs); e a última se refere

aos vínculos criados a partir da aplicação de uma pressão de compactação do pó, que chamamos de Elos Mecânicos Fracos (EFRs), como mostra a representação da Figura 17.

Capítulo 4

Resultados e Discussões

4.1. Temperatura Crítica de Amostras Granulares

Iniciamos o estudo das amostras granulares fazendo medidas de χ_{AC} com o objetivo de relacionar o tamanho do grão da pastilha com sua temperatura crítica, T_c . Definimos T_c como o valor de T acima do qual a resposta magnética é zero. Podemos notar, na Figura 18, que a temperatura crítica das amostras é a mesma, independente do tamanho da partícula, estando próxima de 9,25 K, temperatura crítica do nióbio puro.

Vale notar que a resposta magnética acima de T_c não é exatamente zero, como deveria. Isso se deve ao fato do metal nióbio ter uma resposta paramagnética não nula. Como essa resposta magnética é praticamente constante, tomamos a temperatura de transição como aquela acima da qual a suscetibilidade se torna constante, podemos delimitar a transição supercondutora quando a suscetibilidade magnética se torna constante, o que acontece, para todas amostras com diferentes tamanhos de partículas, por volta de 9,25 K.

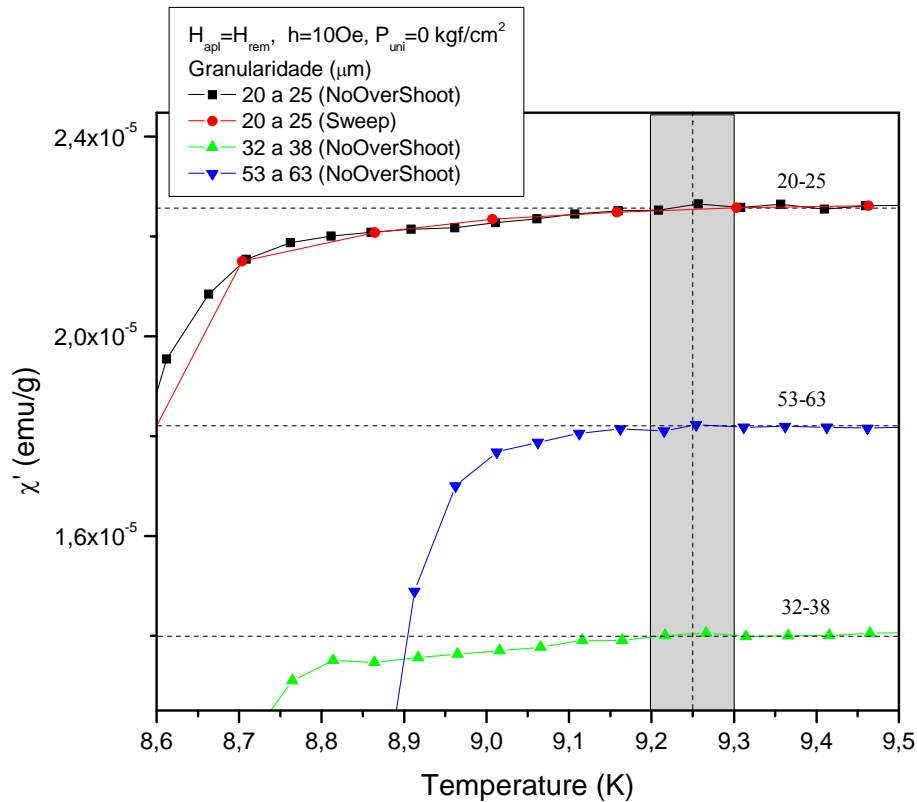


Figura 18. Comparação da temperatura crítica de pastilhas com diferentes tamanhos de partículas.

Foram usados dois métodos de medidas para a obtenção da T_c do material: *Sweep* e *No Overshoot*. No modo *Sweep*, fazemos uma varredura da temperatura em taxa constante e cada medida é feita durante a variação, enquanto no modo *No Overshoot* espera-se a estabilização da temperatura para efetuar a medida. Como vemos na Figura 18 para a pastilha 20-25, os resultados obtidos são equivalentes desde que o modo *Sweep* seja empregado com taxas suficientemente baixas de variação da temperatura.

4.2. Suscetibilidade Magnética Dependente da Pressão

Para caracterizar as amostras, segundo diferentes valores de pressão aplicada, fizemos medidas de susceptibilidade magnética em pastilhas com grãos de tamanhos variados e verificamos que para amostras contendo partículas maiores, há três picos na componente imaginária da susceptibilidade. Observamos na Figura 19, a presença de um pico, próximo a 8 K, comum às três curvas (marcado na figura com o número 2). Atribuímos esse pico à

presença dos elos mecânicos fortes, EFOs, discutidos anteriormente. O pico assinalado com o número 1 é referente à transição intragranular. O pico se dá em uma temperatura mais alta, pois essa é a transição genuína do supercondutor. O pico indexado pelo número 3, de temperatura mais baixa, é devido à supercondutividade de tunelamento através das regiões unidas pela pressão de compactação, i.e., os elos mecânicos fracos, EFRs.

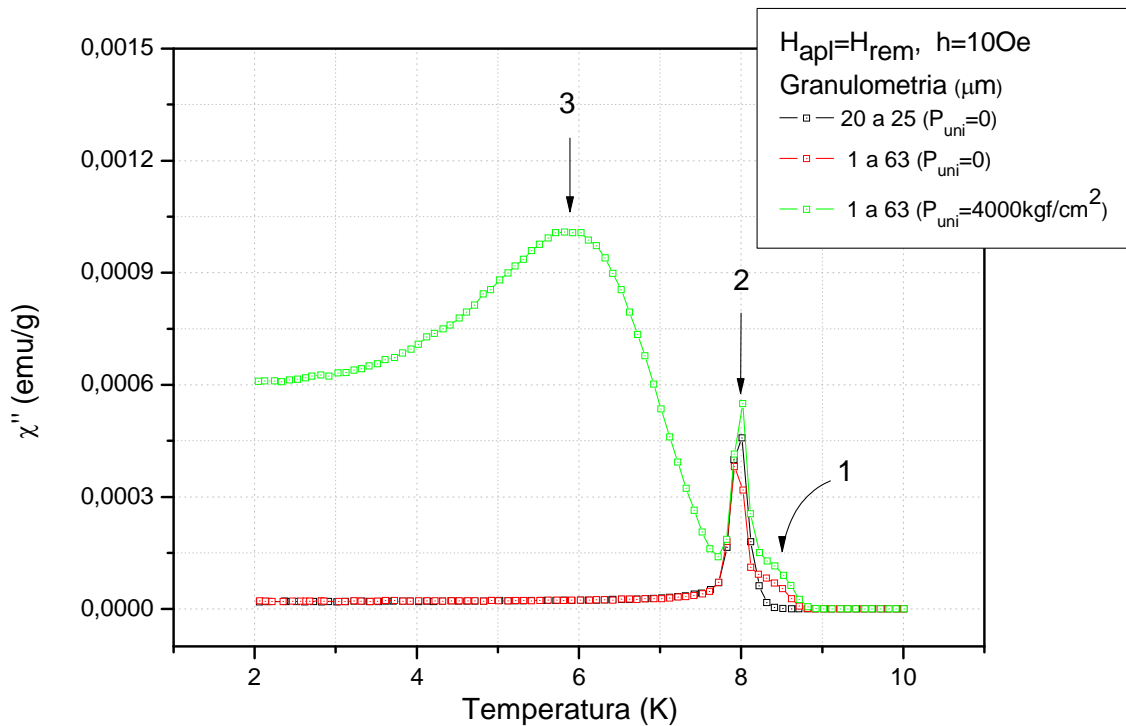


Figura 19. Componente imaginária da suscetibilidade para diferentes pressões aplicadas. Mesmo na amostra contendo apenas pó podemos visualizar a presença de um segundo pico, associado aos EFOs.

Para estudar a suscetibilidade AC dessas amostras granulares de nióbio escolhemos quatro pastilhas com tamanhos de grão entre 20 e 25 μm e pressões de: 0 kgf/cm^2 , 2000 kgf/cm^2 , 4000 kgf/cm^2 e 6000 kgf/cm^2 . Observamos, na Figura 20, que quanto maior a pressão mais pronunciada é a resposta diamagnética da amostra e isso se deve à formação da região intergranular. Para as maiores pressões a camada intergranular é mais estreita e essa barreira deixa de ser um grande obstáculo para o tunelamento das supercorrentes. Portanto para uma mesma granulometria, quanto maior a pressão de compactação do pó, mais diamagnética será a resposta da amostra.

Outra conclusão a que podemos chegar é que quanto maior a pressão aplicada, mais estreita é a transição supercondutora dos EFRs, e ainda maior a temperatura crítica dos mesmos. Em outras palavras, T^* sobe com a pressão de pastilhamento e passa a ser difícil de distinguir entre as respostas inter e intragranulares.

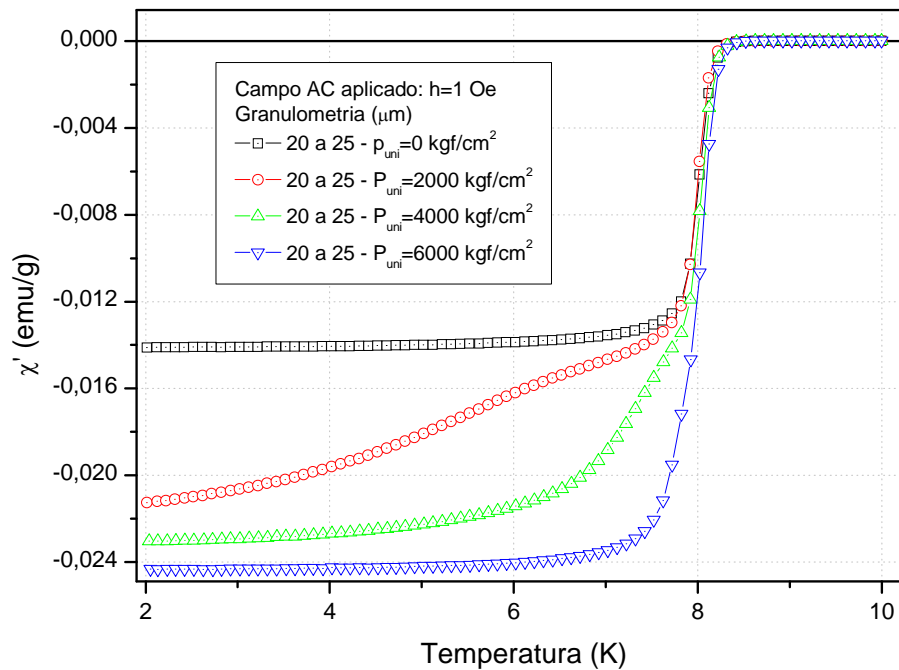


Figura 20. Resposta diamagnética de amostras com grãos entre 20 e 25 μm para diferentes pressões de compactação do pó.

Observando as curvas de χ'' correspondentes verificamos, na Figura 21, que quanto maior a pressão de compactação do pó mais eficientes tornam-se os EFRs, i.e., maior será a temperatura crítica de transição dos elos. Como as amostras têm grãos pequenos, não há o pico “1” (na nomenclatura da Figura 19), mas somente os picos inter (2) e (3). Para a nossa surpresa não é possível ver o pico da transição intragranular para amostras com grãos entre 20 e 25 μm , podendo apenas identificar a movimento dissipativo dos Elos Fortes.

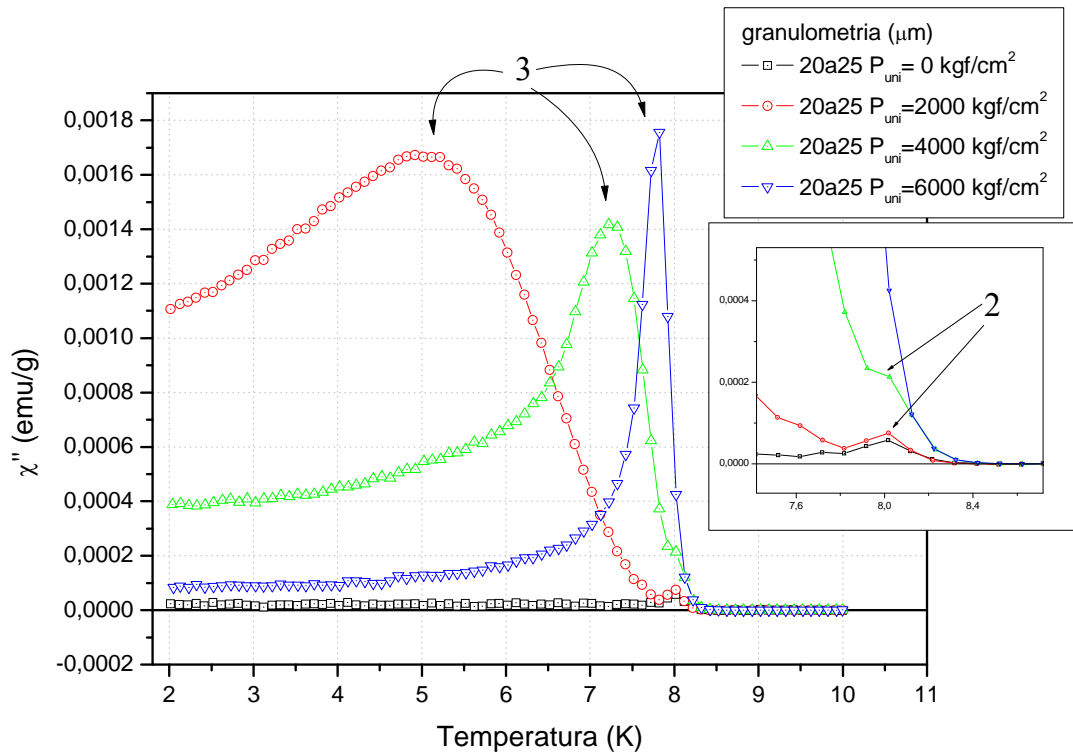


Figura 21. Curvas da componente imaginária da suscetibilidade magnética para amostras com grãos entre 20 e 25 μm e diferentes pressões. A inserção mostra uma ampliação da transição dos elos mecânicos fortes.

4.3. Suscetibilidade Magnética Dependente do Tamanho dos Grãos

Com o objetivo de entender como a resposta magnética do meio intergranular depende do tamanho de grãos foram feitas pastilhas com diferentes granulometrias, fixando a pressão aplicada em 4000 kgf/cm^2 . Observamos que, quanto maiores os grãos, mais eficientes são os EFRs, ou seja, estes deixam de transportar supercorrentes em temperaturas mais altas, como pode ser verificado nas Figura 22 e Figura 23. Para a amostra com grãos entre 53 e 63 μm não é possível diferenciar claramente os picos, referentes aos EFRs e aos EFOs, pois eles estão sobrepostos.

Outra constatação que extraímos da Figura 22 é que o pico referente à transição supercondutora do Nb metálico só é visto em amostras com grãos grandes. Parece haver pouco movimento viscoso dos vórtices nos grãos menores que 25 μm , possivelmente um efeito de tamanho na resposta magnética.

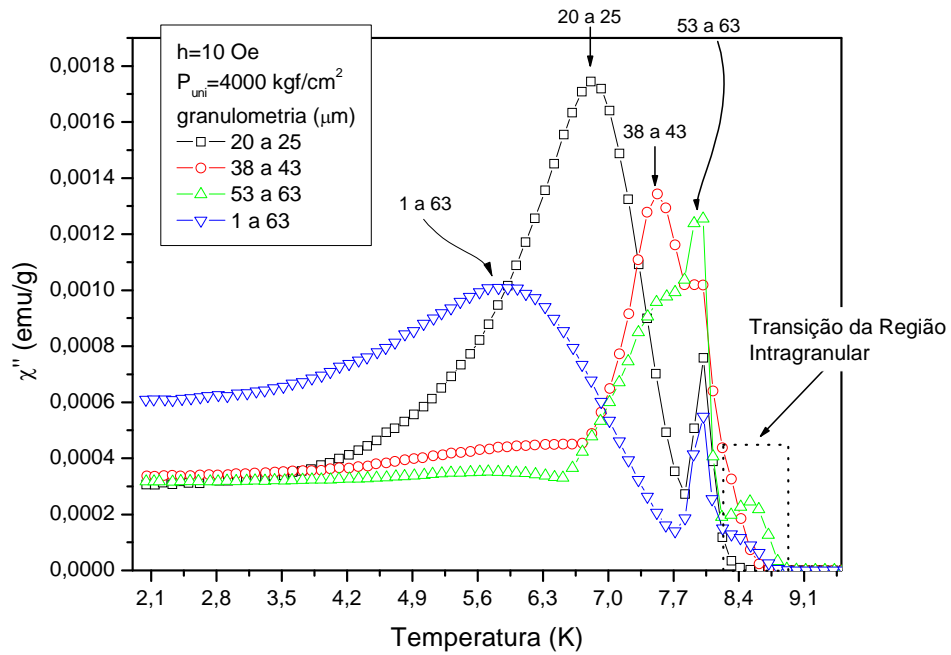


Figura 22. Curvas de suscetibilidade (imaginária) versus temperatura. Dependência da resposta para amostras com diferentes tamanhos de grãos.

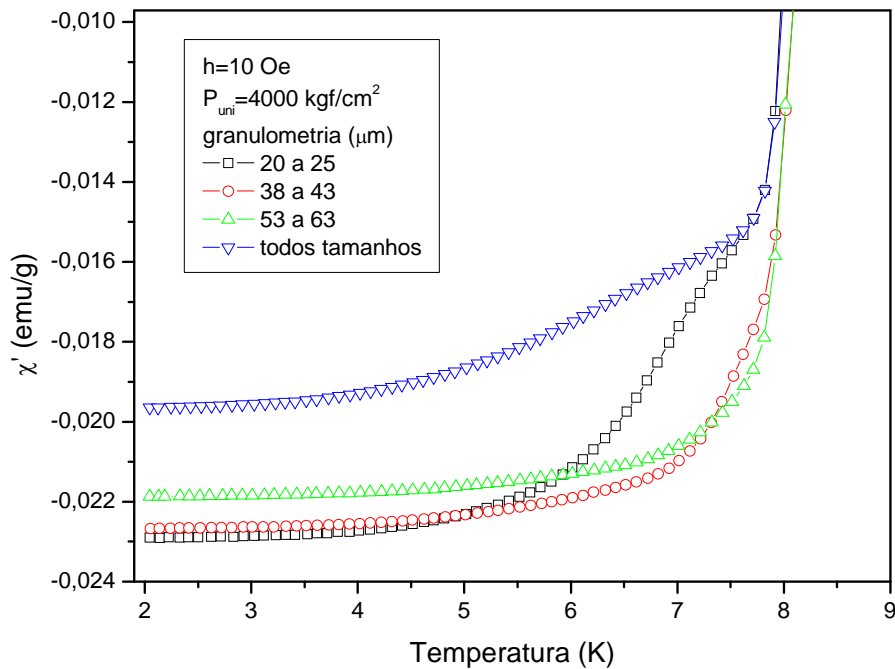


Figura 23. Curvas de suscetibilidade (real) versus temperatura. Capacidade de blindagem do campo magnético segundo o tamanho dos grãos.

4.4. Retenção de Fluxo Magnético

Uma amostra granular pode funcionar como um bom dispositivo para o aprisionamento de fluxo magnético. Quando realizamos um processo $FCW_{H_{rem}}$, ou seja, resfriamos a amostra na presença de um campo magnético e fazemos a medida do momento magnético subindo a temperatura, parte do fluxo magnético aplicado pode ficar aprisionado entre os grãos (efeito Meissner paramagnético). Em uma medida de magnetização versus temperatura o PME é evidenciado como uma reentrância perto da temperatura crítica dos EFRs, como pode ser visto na Figura 24.

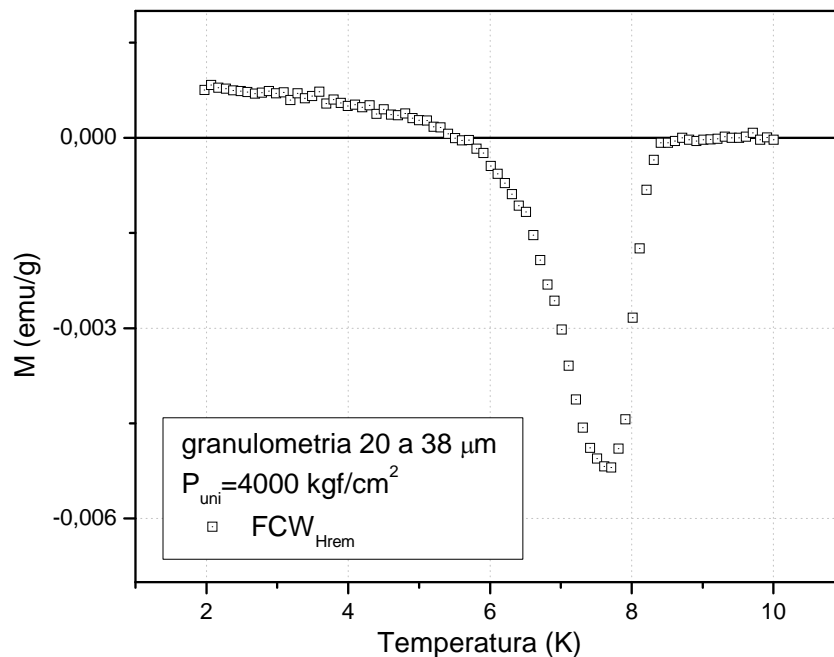


Figura 24. Magnetização versus temperatura em um processo de medida FCW onde o campo aplicado é o campo remanente H_{rem} na bobina do aparelho de medida.

Vale ressaltar que no estudo da retenção do fluxo magnético realizamos medidas da magnetização em função da temperatura seguindo sempre o mesmo protocolo: inicialmente o processo $FCW_{H_{rem}}$ e em seguida a medida $FCC_{H_{rem}}$.

Estudamos duas maneiras de evitar que o fluxo magnético fique aprisionado na região intergranular. Uma delas é aplicar um campo magnético AC que possa facilitar o desprendimento de fluxo magnético. Obtivemos um resultado análogo ao *Vortex Shaking Field* de Brandt e Brastsberg²⁰ em nossas amostras de Nióbio, como pode ser visto nas Figura 25 e Figura 26.

A única diferença entre as amostras que geraram as duas figuras é a pressão de compactação do pó. Podemos notar que a resposta paramagnética é maior para a pastilha com maior pressão, o que é esperado, já que quanto maior a pressão, mais alta a temperatura crítica dos EFRs, ou ainda, melhor o aprisionamento de fluxo magnético na amostra. O estado com fluxo aprisionado é metaestável, sendo desestabilizado pela aplicação de um campo de excitação paralelo ao campo remanente.

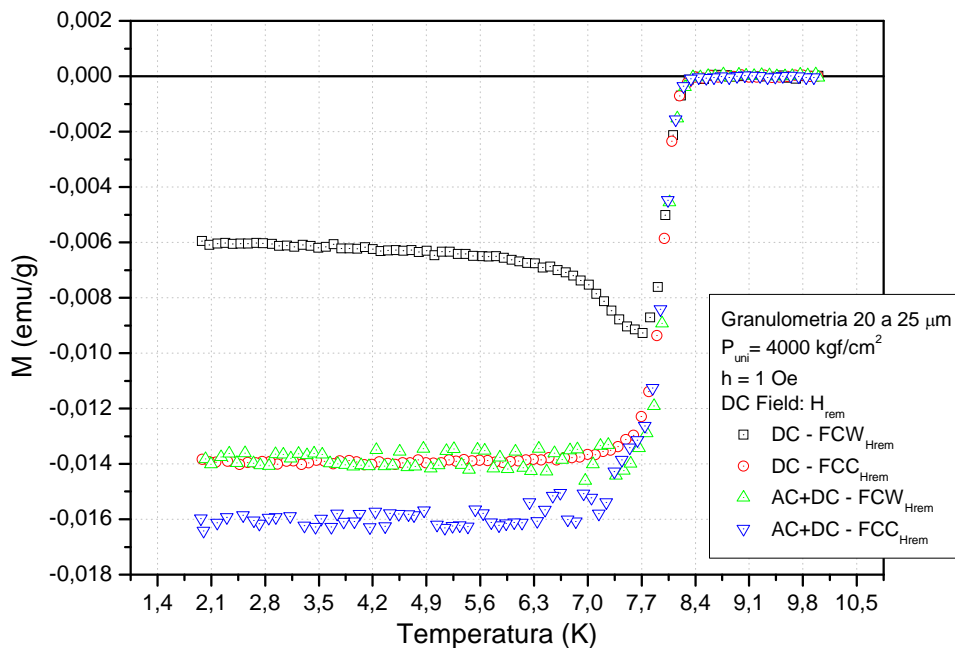


Figura 25. Curvas de Magnetização com campo DC remanente e com campo DC remanente após aplicação de um campo AC. As medidas foram feitas, em amostras com partículas de tamanhos entre 20 e 25 μm com pressão uniaxial de 4000 kgf/cm^2 , por dois processos diferentes: FCW_{Hrem} e FCC_{Hrem}.

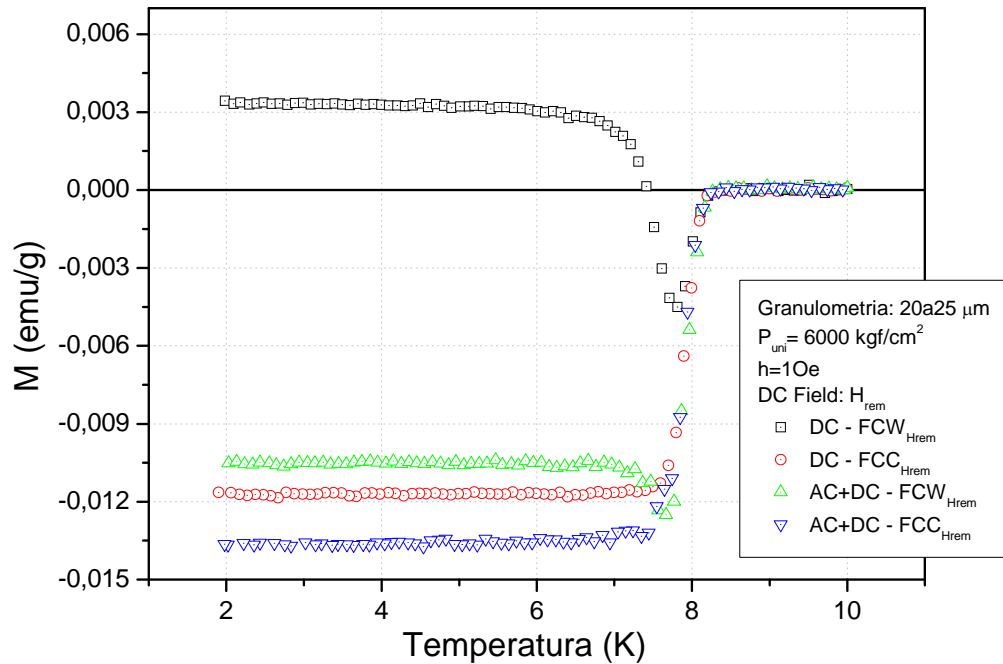


Figura 26. Curvas de Magnetização com campo DC remanente e com campo DC remanente após aplicação de um campo AC. As medidas foram feitas, em amostras com partículas de tamanhos entre 20 e 25 μm com pressão uniaxial de 6000 kgf/cm^2 , por dois processos diferentes: FCW_{Hrem} e FCC_{Hrem}.

No processo FCW_{Hrem} podemos notar que o papel do campo AC é bastante evidente. A resposta magnética antes (DC – FCW_{Hrem}) e depois (AC+DC – FCW_{Hrem}) da aplicação do campo magnético é muito diferente, mostrando que o campo AC realmente atua de forma a desprender o fluxo magnético aprisionado nas regiões intergranulares. Já no processo FCC_{Hrem} existe uma diferença na resposta magnética porém não é tão pronunciada como no processo FCW_{Hrem}.

A outra maneira de não termos fluxo magnético aprisionado na matriz intergranular é usar uma taxa de resfriamento muito baixa. Na Figura 27 podemos notar, sem a aplicação de um campo AC, como o aprisionamento de fluxo depende da taxa de resfriamento a que a amostra é submetida antes do processo de medida.

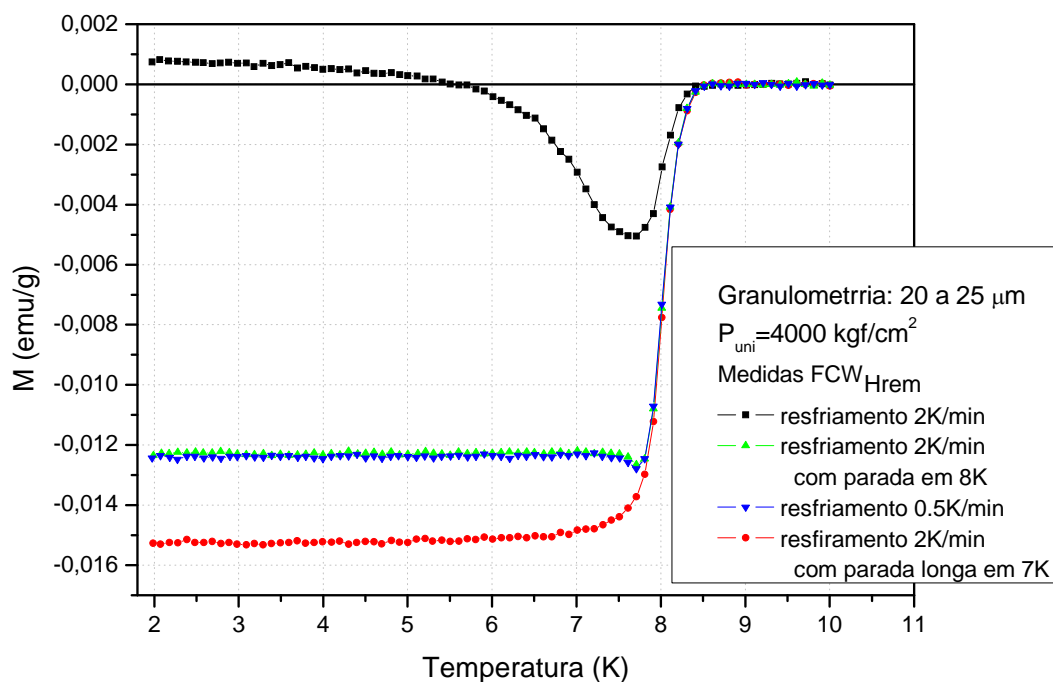


Figura 27. Curvas de Magnetização em uma amostra de granulometria entre 20 e 25 μm , com diferentes taxas de resfriamento.

No caso em que a amostra foi resfriada em um taxa de 2 K/min, podemos observar, que houve uma grande quantidade substancial de fluxo aprisionado, o que é evidenciado pela grande reentrância de tal curva, mostrada na Figura 27. Quando baixamos a taxa de resfriamento para 0,5 K/min ou fazemos uma parada em 8 K (próximo a temperatura crítica dos EFRs) notamos que o sistema tem tempo para expulsar o fluxo aprisionado na região intergranular. Podemos concluir, a partir desse conjunto de medidas, que o aprisionamento do fluxo magnético não é apenas uma característica da amostra, mas também algo que depende do processo utilizado para chegar àquele estado.

Voltando à taxa de 2 K/min, realizamos medidas a fim de entender como o fluxo magnético é aprisionado em amostras com diferentes tamanhos de partículas e diferentes pressões de compactação do pó de nióbio. Para isso foram fabricadas quatro amostras com diferentes dispersões do tamanho das partículas e de pressão. Duas amostras com partículas entre 20 e 25 μm e pressões de 4000 e 6000 kgf/cm^2 , e duas com partículas entre 20 e 63 μm e pressões de 4000 e 6000 kgf/cm^2 .

Comparando as duas amostras de partículas menores, concluímos que quanto maior a pressão, maior a capacidade de aprisionamento de fluxo magnético, o que fica evidente na grande resposta paramagnética da amostra de 20 e 25 μm e pressão 6000 kgf/cm^2 , mostrada na Figura 28.

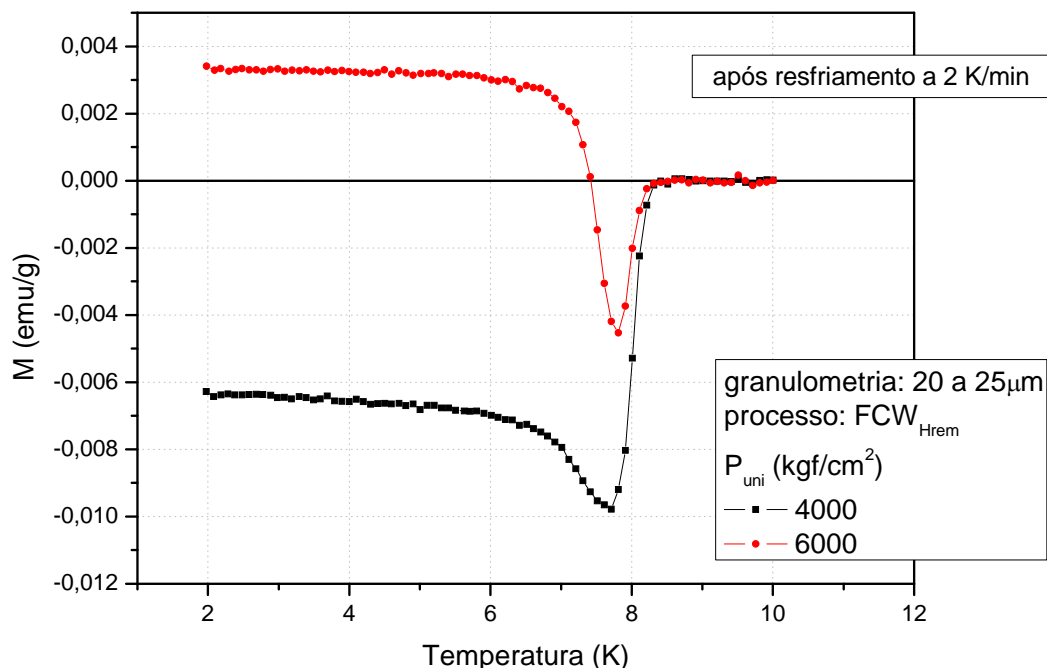


Figura 28. Curvas de Magnetização para diferentes amostras com mesmo tamanho de partículas (20 a 25 μm) e diferentes pressões.

Já no caso das pastilhas com partículas entre 20 e 63 μm podemos notar, na Figura 29, o mesmo padrão do outro par de amostras, porém nesse conjunto fica evidente apenas o aprisionamento (menor resposta diamagnética) de fluxo, mas não há reentrância. Outro indício relevante de que é a retenção de fluxo que leva à reentrância (i.e., a uma competição entre uma resposta negativa e outra positiva) é que as magnitudes das curvas na Figura 29 são sistematicamente maiores do que as da Figura 28, pois a contribuição do fluxo retido (positiva) para M nas amostras com grão menores é comparável à dos próprios grãos (negativa), resultando em um cancelamento mais efetivo da resposta diamagnética.

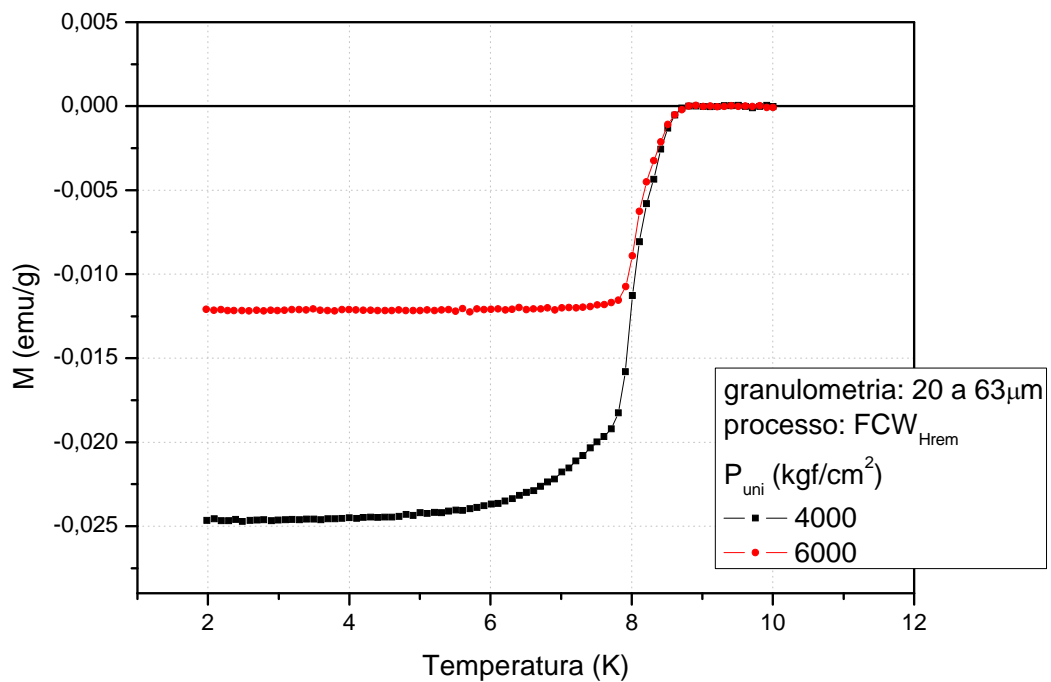


Figura 29. Curvas de Magnetização para diferentes amostras com mesmo tamanho de partículas (20 a 63 μ m) e diferentes pressões.

Continuando o estudo da eficiência na retenção de fluxo magnético com relação ao tamanho de partícula e à pressão, selecionamos uma pressão adequada, que em nosso caso foi 4000 kgf/cm² e fizemos medidas de $M \times T$ para amostras em três diferentes intervalos de dispersão: 20 a 25 μ m, 20 a 38 μ m e 20 a 63 μ m. Pudemos notar que amostras com pequena dispersão no tamanho dos grãos têm uma maior facilidade de aprisionar fluxo magnético, enquanto que amostras com maior dispersão, não há reentrâncias e, conseqüentemente, o eventual aprisionamento de fluxo, ainda que ocorra, não se evidencia em curvas $M \times T$.

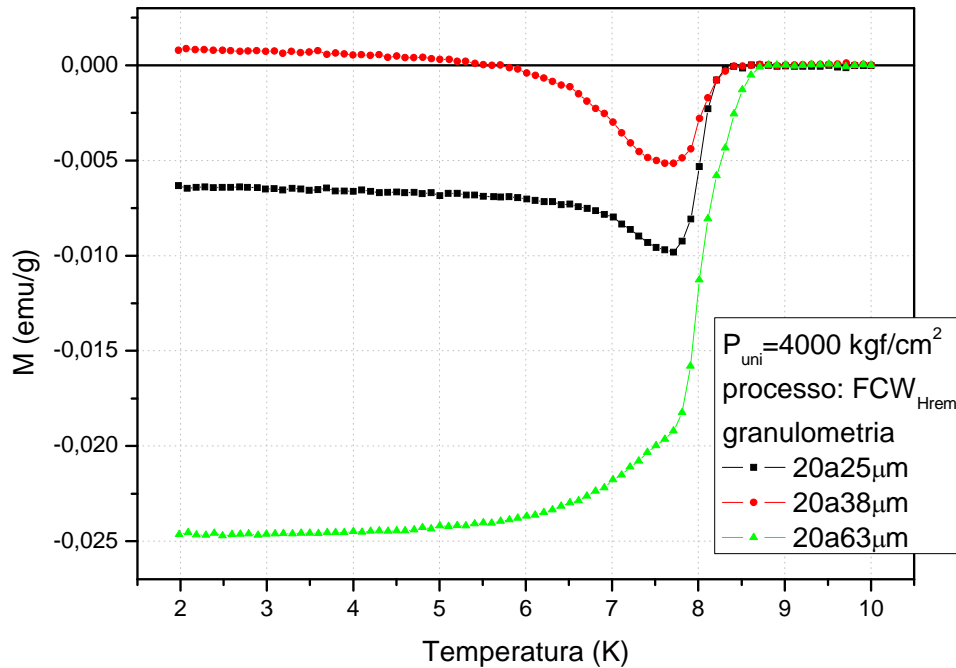


Figura 30. Curvas de Magnetização para diferentes amostras com mesma pressão e diferentes tamanhos de partículas.

Podemos concluir com esse estudo que o aprisionamento de fluxo magnético depende de vários parâmetros experimentais, tais como o tamanho das partículas, a pressão de compactação do pó e ainda a taxa de resfriamento da amostra na preparação do estado inicial. Além disso, pudemos comprovar que amostras com fluxo retido encontram-se em equilíbrio metaestável, já que o estado é sensível não apenas à taxa de resfriamento, mas também à aplicação de uma excitação AC, capaz de prover o desprendimento parcial do fluxo aprisionado.

4.5. Densidade de Corrente Crítica

Como parte deste estudo, interessa-nos entender como a densidade de corrente crítica de um supercondutor granular depende do tamanho de partículas. Para isso selecionamos (de acordo com as nossas peneiras) três grupos de pós com dispersões parecidas, porém, com tamanho de partículas diferentes.

A sequência de Figura 31 a Figura 33 apresenta os resultados dos laços de histerese^[2] agrupados por amostra, nas temperaturas de 2 K, 4 K, 6 K e 8 K. Nas ilustrações seguintes, Figuras 34 a 37, os mesmos dados são apresentados, agora agrupados pelo valor da temperatura de medida.

É notável que a $T = 2, 4$ e 6 K as pastilhas com partículas menores têm laços idênticos entre si, enquanto que a pastilha 53-63 tem um laço mais aberto, tanto no ramo ascendente quanto no descendente. Isso indica que essa pastilha, com partículas maiores, tem maior capacidade de blindagem (campo crescendo) e também maior capacidade de retenção de fluxo (campo diminuindo). Esse comportamento está em pleno acordo com nossa observação anterior de que as pastilhas com grãos maiores têm EFRs mais fortes (seção 4.3), o que dificulta tanto a entrada quanto a saída de fluxo, em comparação com as demais pastilhas. É justamente essa dificuldade adicional de saída de fluxo que possibilita a observação do efeito Meissner paramagnético nas pastilhas com partículas maiores, como foi apresentado e discutido na seção 4.4. A diferença que se observa nas curvas tomadas a 8 K (apenas para duas das pastilhas com partículas menores, com já explicamos anteriormente) é muito pequeno – note-se a diferença de escala com as figuras referentes a temperaturas mais baixas e não merece maior atenção, em vista da proximidade com T_c e, conseqüentemente, da relativa ineficácia de EFRs e EFOs nessa temperatura.

^[2] A medida a $T = 8$ K para a pastilha 53-63 μm nunca foi realizada. À época do estudo dos laços de histerese das pastilhas, quando faltava apenas a referida medida, o PPMS passou subitamente a apresentar grandes instabilidades na temperatura e foi preciso realizar um reparo no equipamento; após vários dias de inatividade, quando o sistema foi reparado havia uma fila considerável de usuários escalados em caráter de urgência e foi então considerado que poderíamos prescindir daquela medida sem prejuízo significativo para o trabalho.

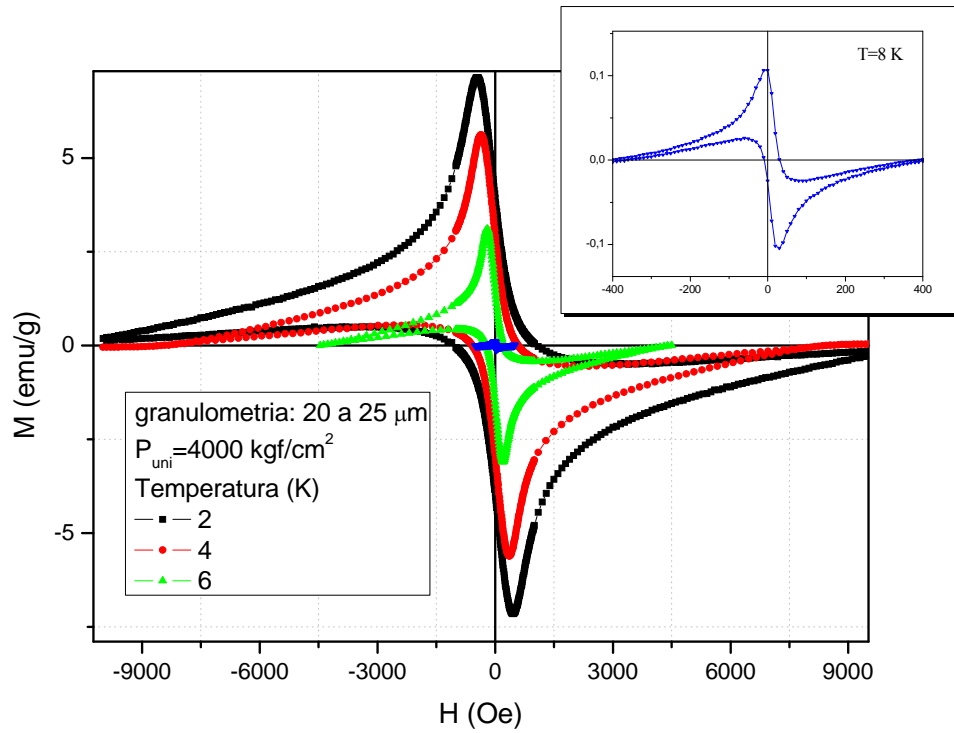


Figura 31. Laços de histerese da pastilha com grãos entre 20 e 25 μm para diferentes temperaturas. Na inserção é mostrado o laço para 8 K.

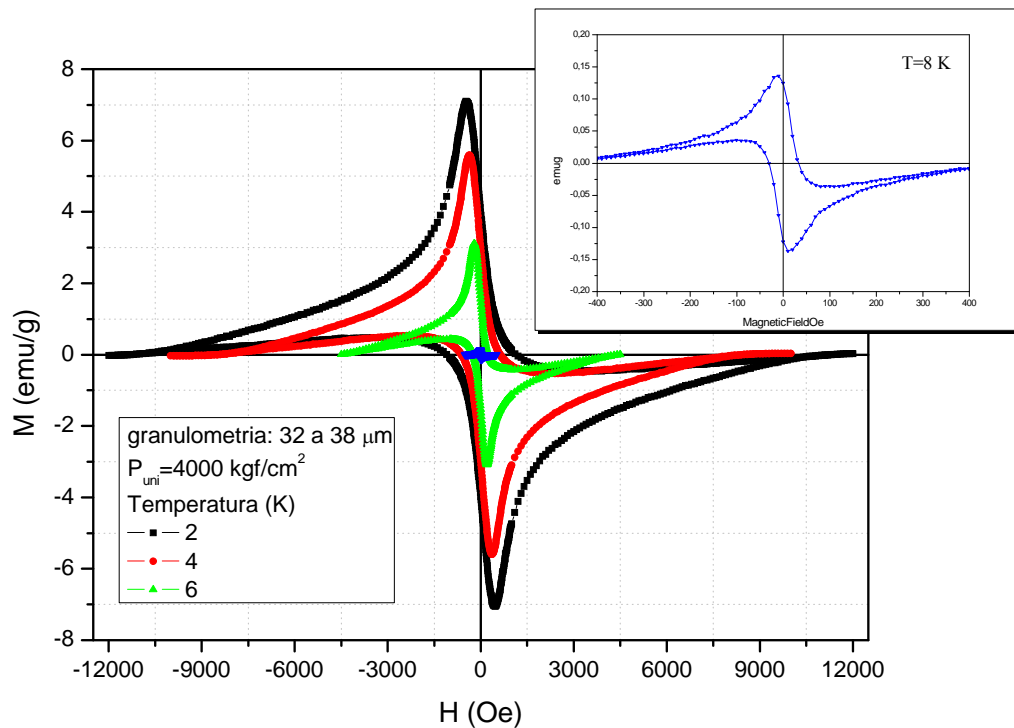


Figura 32. Laços de histerese da pastilha com grãos entre 32 e 38 μm para diferentes temperaturas. Na inserção é mostrado o laço para 8 K.

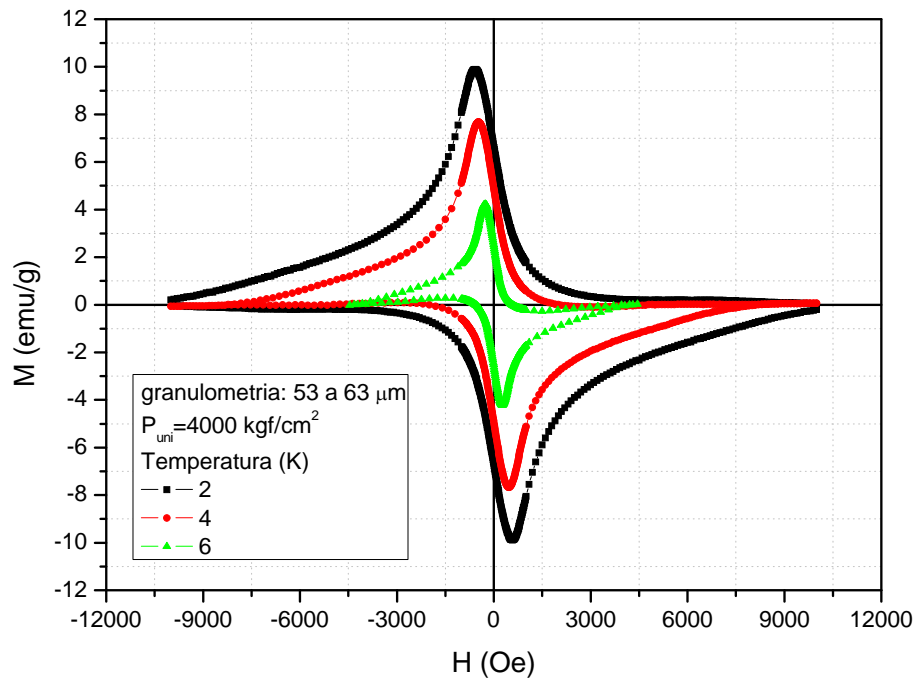


Figura 33. Laços de histerese da pastilha com grãos entre 53 e 63 μm para diferentes temperaturas.

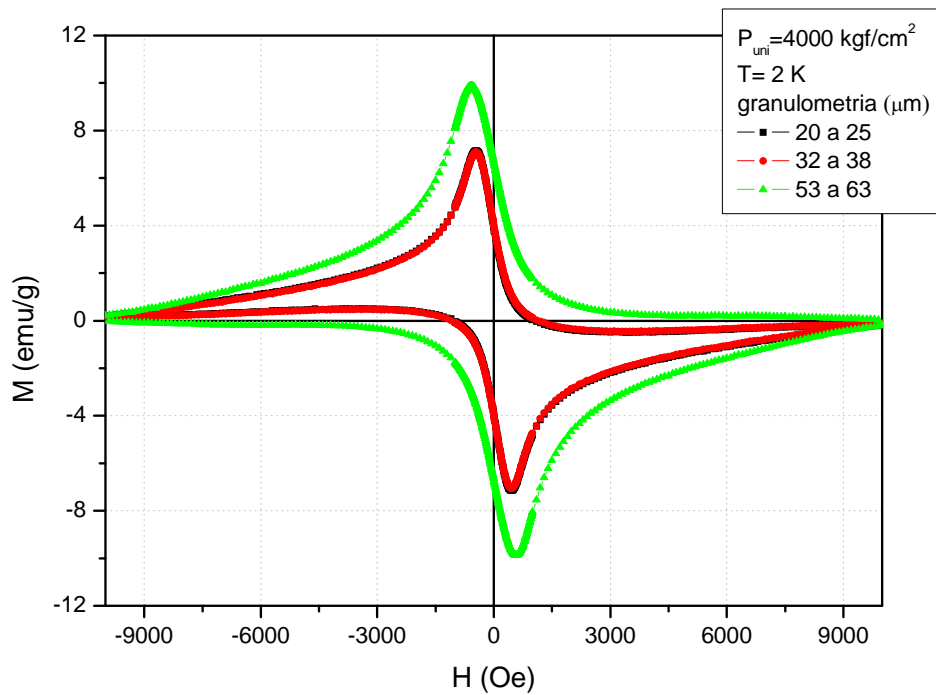


Figura 34. Comparação dos laços de histerese das três pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 2 K.

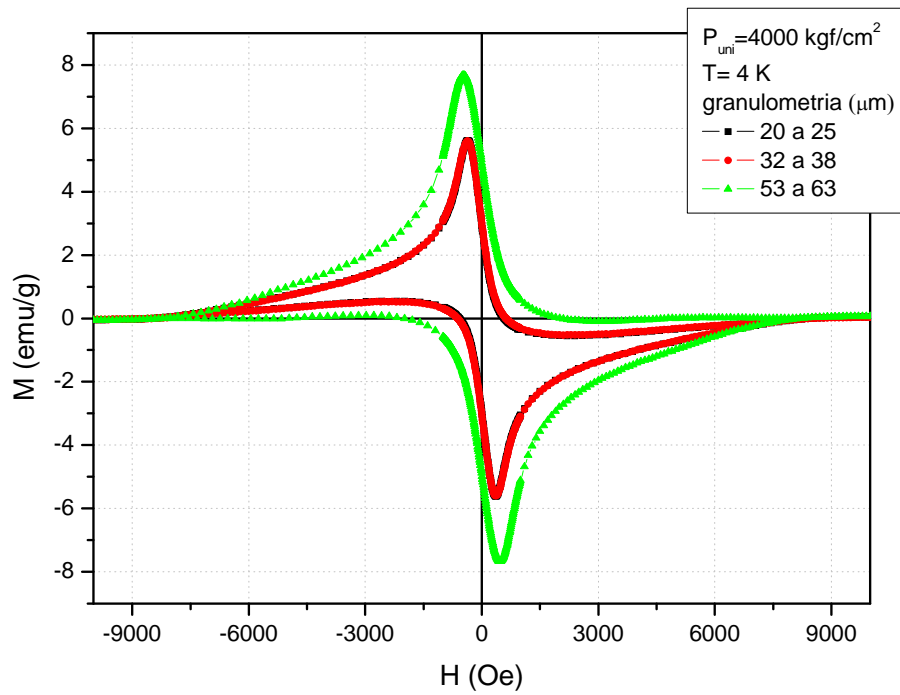


Figura 35. Comparação dos laços de histerese das três pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 4 K.

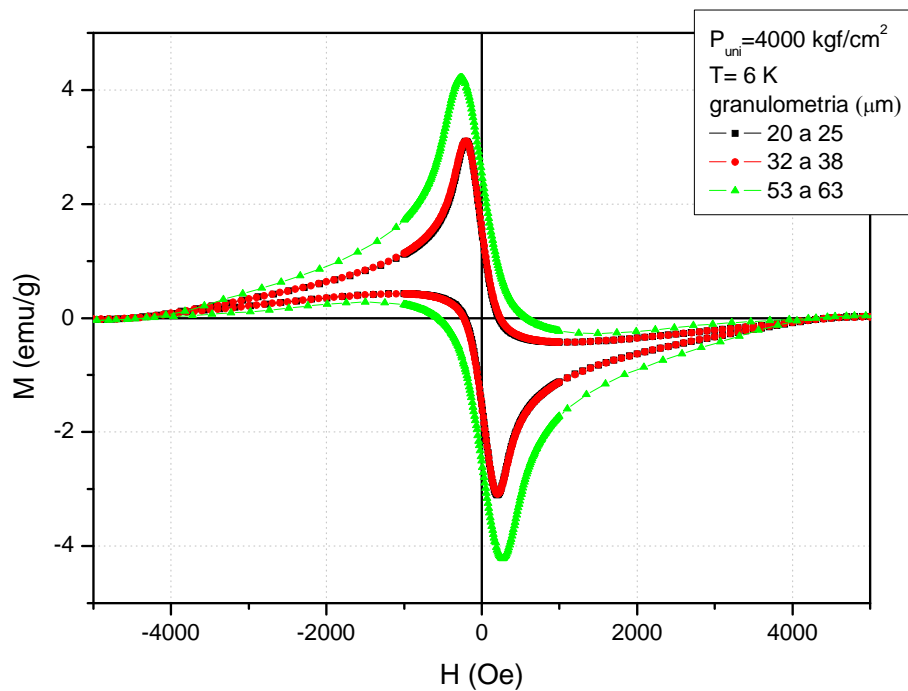


Figura 36. Comparação dos laços de histerese das três pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 6 K.

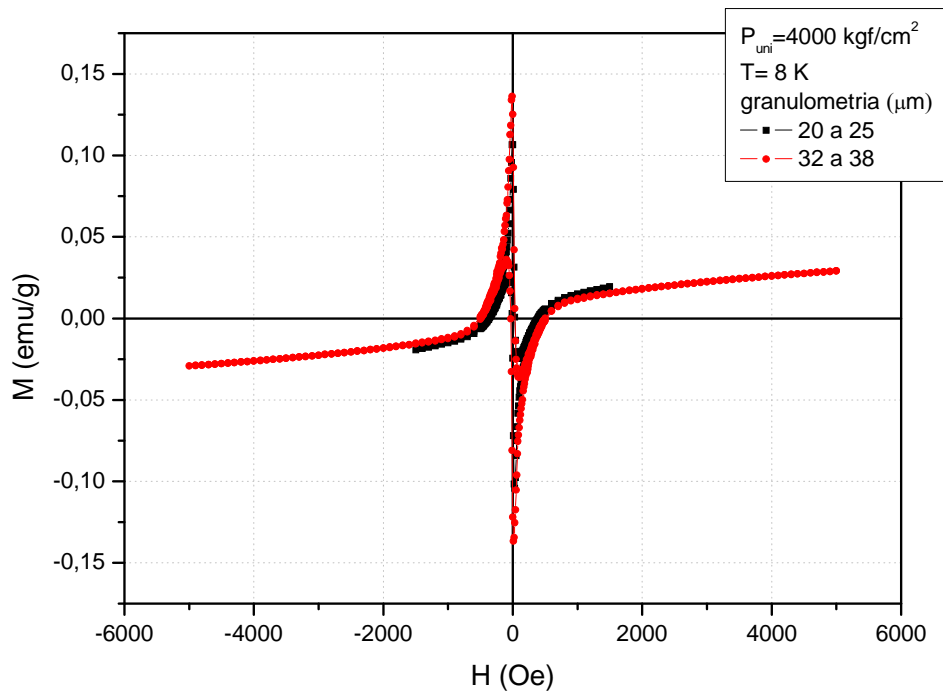


Figura 37. Comparação dos laços de histerese das três pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 8 K.

A partir dos laços $M \times H$, utilizamos o modelo de Bean e a correção de Johansen e Bratsberg¹⁶, Equação (1.33), para encontrar as curvas de corrente crítica em função do campo magnético aplicado. Na sequência de Figuras 38 a 40 foram reunidas as curvas de $J_c(H)$ por pastilha. É notável que a porção inicial das curvas $J_c(H)$ é evidentemente não-física: não é concebível que a corrente crítica aumente com a aplicação de um campo magnético. Desse modo, o início crescente das curvas $J_c(H)$ deve ser encarado como um artefato associado ao modelo empregado, e deve ser desconsiderado. Nos gráficos subsequentes, Figuras 41 a 43, as mesmas curvas foram agrupadas pelo valor de T (2, 4 e 6 K), com a devida omissão da porção inicial crescente de $J_c(H)$.

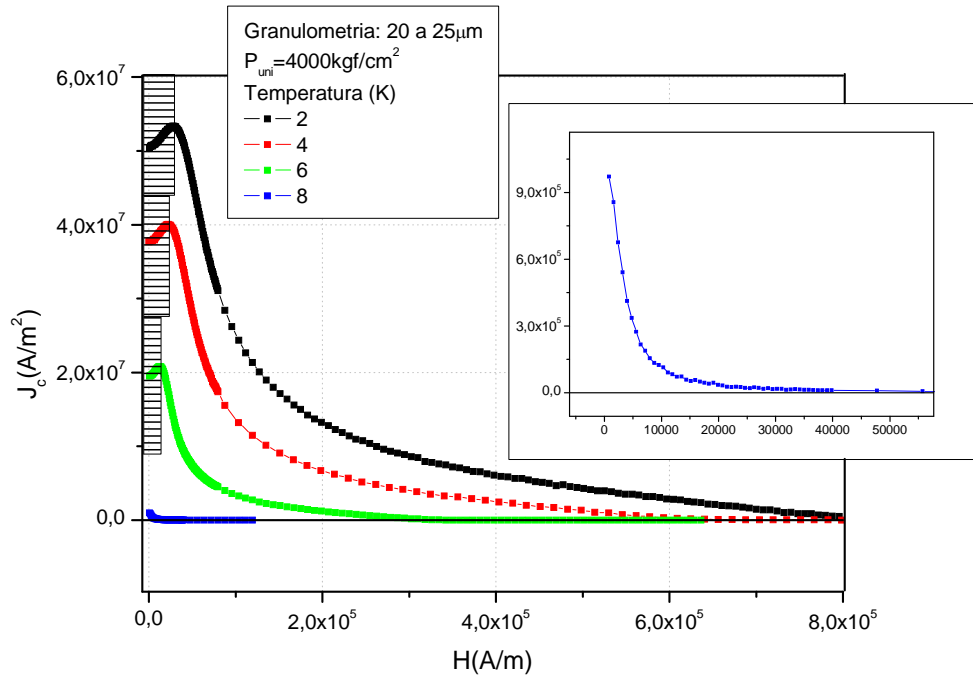


Figura 38. Curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado, obtidas a partir de laços de histerese tomados a diversas temperaturas (2, 4, 6 e 8 K) para a pastilha com partículas entre 20 e 25 μ m. Na inserção é mostrada a curva para 8 K.

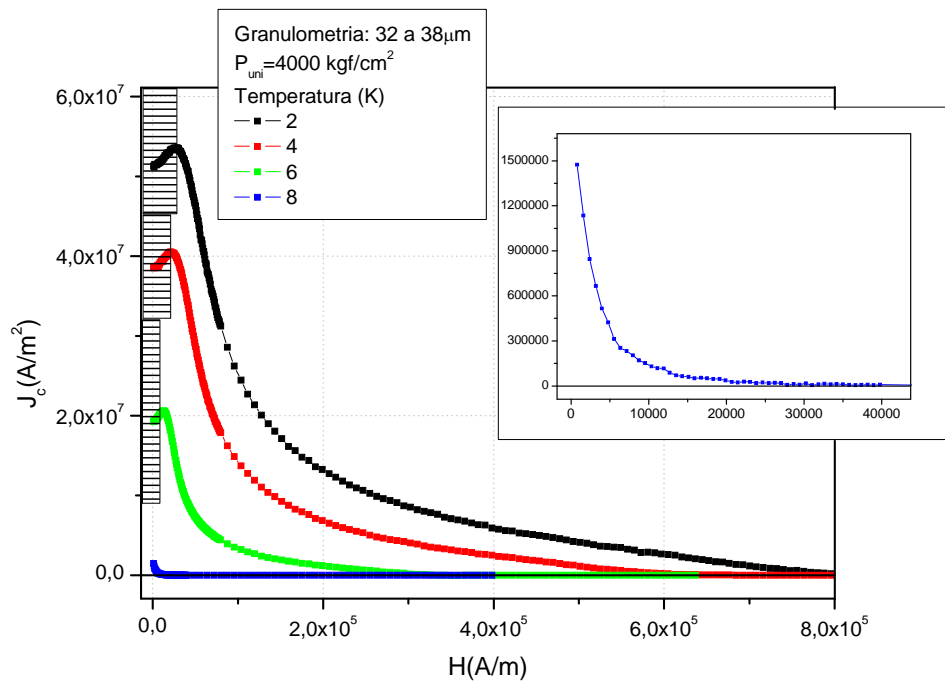


Figura 39. Curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado, obtidas a partir de laços de histerese para diversas temperaturas (2, 4, 6 e 8 K) para a pastilha com partículas entre 32 e 38 μ m. Na inserção é mostrada a curva para 8 K.

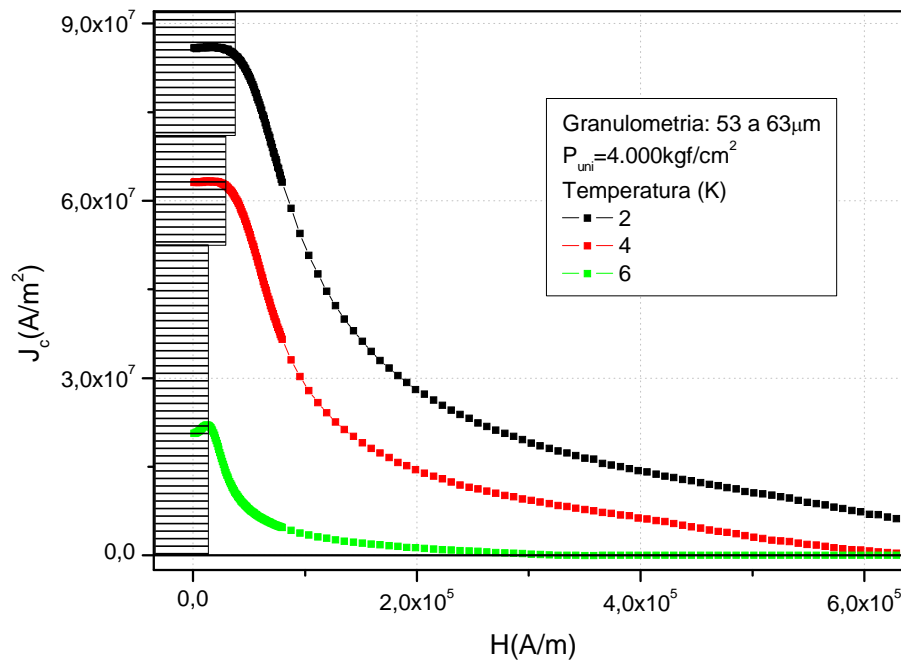


Figura 40. Curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado, obtidas a partir de laços de histerese tomados a diversas temperaturas (2, 4 e 6 K) para a pastilha com partículas entre 53 e 63 μm .

Uma vez que as curvas de $J_c(H)$ são obtidas diretamente dos ciclos de histerese, é natural que laços superpostos gerem curvas idênticas para a corrente crítica, como se vê nas Figuras 41 e 42 para as pastilhas 20-25 e 32-38. Na Figura 43 vemos que as correntes críticas das três pastilhas são praticamente idênticas à temperatura de 6 K, embora a ampliação mostre que a pastilha 53-63 tem corrente crítica um pouco maior do que as das demais. Essa fraca dependência com o tamanho das partículas sugere que, para essa temperatura, os EFRs já não têm eficiência na blindagem de campos magnéticos, restando apenas as contribuições das regiões intragranulares e dos EFOs. As primeiras representam a resposta intrínseca do material e, como os elos fortes também estão presentes em todas as partículas, é perfeitamente concebível que haja um progressivo desaparecimento das diferenças para temperaturas mais elevadas.

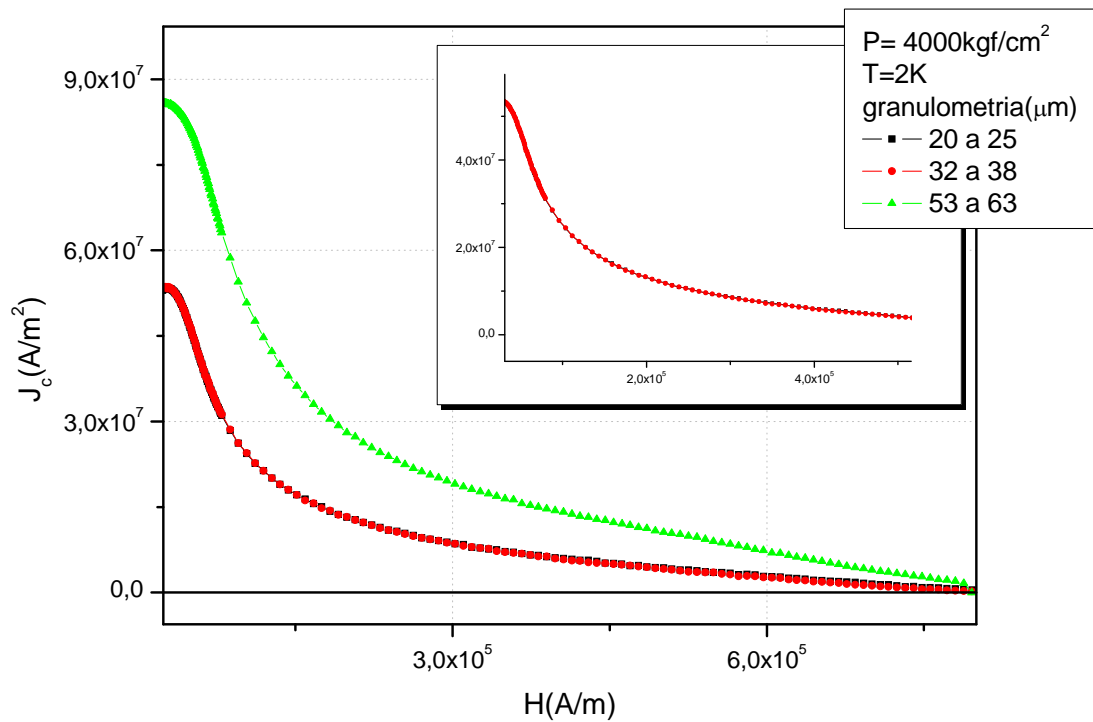


Figura 41. Comparação das curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado para as 3 pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 2 K.

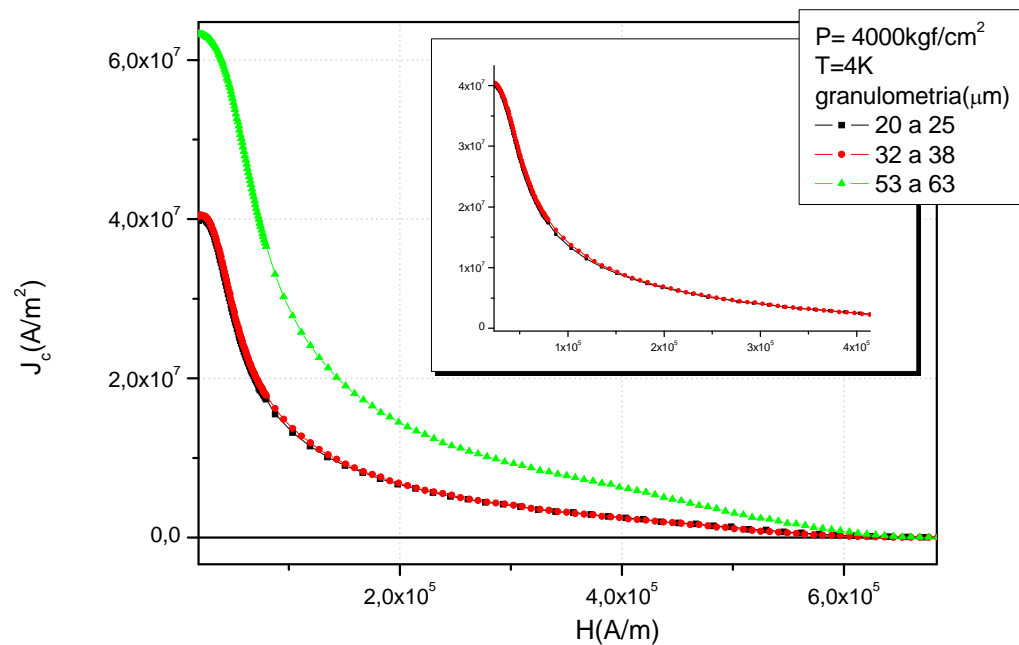


Figura 42. Comparação das curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado para as 3 pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 4 K.

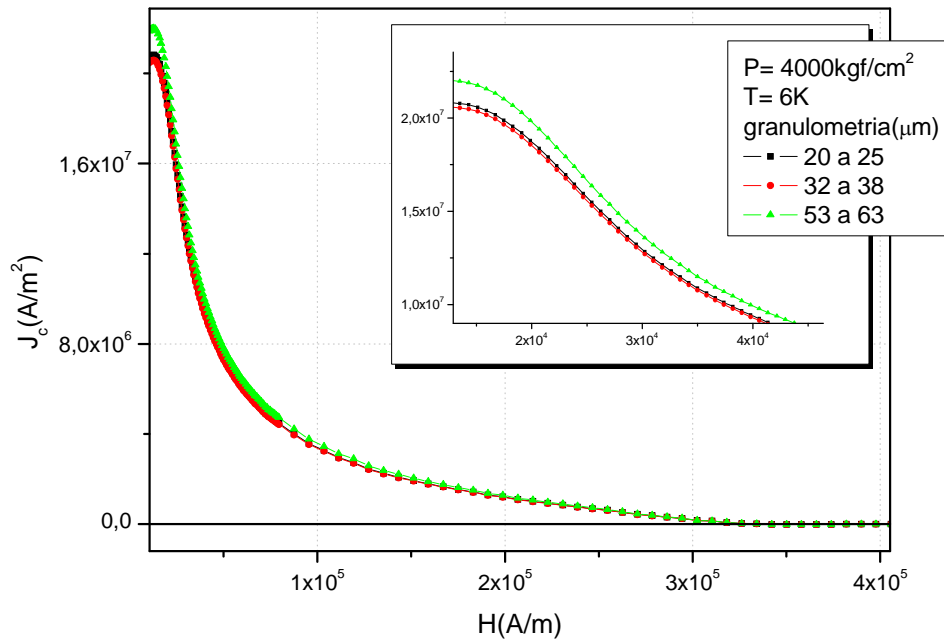


Figura 43. Comparação das curvas da densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado para as 3 pastilhas (20-25, 32-38 e 53-63) obtidos à temperatura de 6 K.

Para concluir, apresentamos na Figura 44 uma ilustração que ajuda a visualizar a razão pela qual pastilhas com partículas maiores (e com baixa dispersão de tamanhos) têm maior capacidade de aprisionamento de fluxo magnético. No esboço vemos, em escala aproximada, dois arranjos com quatro partículas cada, representando uma minúscula fração das pastilhas 20-25 e 53-63. Para um mesmo valor de H aplicado, quando a amostra é resfriada e os EFRs passam a superconduzir, o fluxo aprisionado é proporcional à área hachurada, muito maior em pastilhas de grãos maiores. Quando a dispersão é grande, partículas menores ocupam as lacunas – total ou parcialmente – eliminando essa diferença sistemática observada e discutida neste trabalho.

Por outro lado, é perfeitamente concebível que partículas maiores tenham uma maior área de contato com suas vizinhas, o que permite inferir uma maior capacidade de transportar supercorrentes intergranulares (i.e., de uma partícula a outra), de modo que a blindagem de fluxo seja também mais eficiente nessa classe de pastilhas, o que igualmente foi observado neste trabalho.

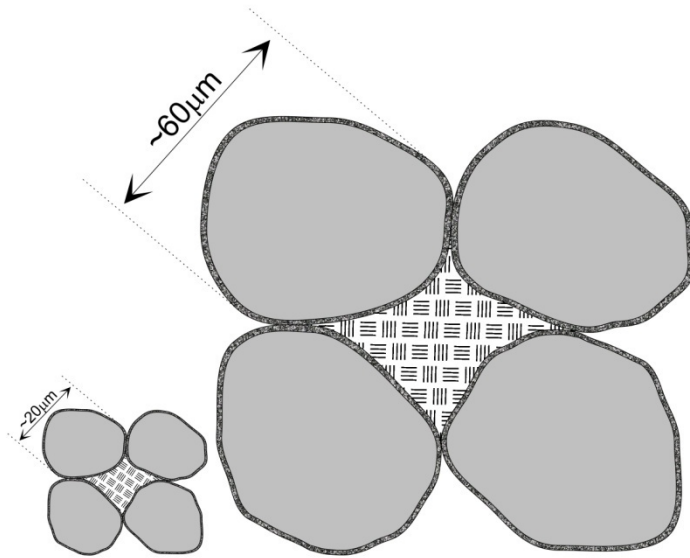


Figura 44. Comparação esquemática entre os espaços vazios (área hachurada) de duas amostras com baixa dispersão de tamanho de partículas.

Capítulo 5

Considerações Finais

Para estudar a retenção de fluxo magnético em amostras supercondutoras é preciso entender o comportamento dos EFRs, já que o ancoramento do campo magnético se dá nas regiões intergranulares, como defeitos e regiões vazias dentro do supercondutor. A capacidade de blindar fluxo magnético – assim como a de aprisioná-lo – refletem-se diretamente nos diferentes ramos do ciclo de histerese de uma pastilha supercondutora. Devidamente tratados, os dados do laço de histerese revelam a máxima capacidade de transporte de corrente da amostra.

Neste trabalho de mestrado, utilizamos pó de nióbio para estudar a resposta magnética das regiões intergranulares de pastilhas formadas a partir da compactação do pó, tratando de compreender o papel de três parâmetros controláveis na preparação da pastilha: a pressão de compactação do pó, o tamanho dos grãos e a sua dispersão.

Uma vez verificada a independência da temperatura crítica de diferentes pastilhas com o tamanho das partículas, sua dispersão e pressão de compactação, estudamos a dependência da magnetização e da suscetibilidade AC com esses parâmetros experimentais.

Constatamos que, quanto maior a pressão, maior é o aprisionamento de fluxo magnético na região intergranular e ainda mais eficientes se tornam os EFRs. Por outro lado, quanto maiores forem as partículas, maior a temperatura crítica dos EFRs, ou seja, as pastilhas fabricadas com partículas maiores têm uma maior robustez da supercondutividade.

Foi possível observar o Efeito Meissner Paramagnético, que ficou evidenciado nas reentrâncias das curvas de Magnetização em função da Temperatura. No caso da variação do

tamanho de grãos, o ancoramento dos vórtices foi mais eficaz em amostras com partículas grandes e pequena dispersão de tamanho.

Verificamos ainda o caráter metaestável de estados preparados de modo que houvesse fluxo aprisionado, comparando medidas de magnetização antes e depois da aplicação de um campo AC, que propicia o desprendimento do fluxo magnético aprisionado na região intergranular, efeito semelhante ao *Vortex Shaking*.

Para concluir, realizamos laços de histerese com vistas à obtenção da dependência da corrente crítica em função do campo magnético aplicado, empregando para tanto um modelo de estado crítico. Neste caso verificamos que para temperaturas mais baixas (2 K e 4 K), a densidade de corrente crítica é maior para pastilhas com partículas maiores e pequena dispersão de tamanho. Em temperaturas mais altas (6 K e 8 K), quando tanto EFOs quanto EFRs já deixaram de conduzir supercorrentes, as curvas de densidade de corrente crítica de todas as amostras são muito semelhantes. Isto indica que a diferença na densidade de corrente crítica das amostras com partículas maiores (nas curvas a 2 K e 4 K) se deve aos elos fracos, que são diferentes de uma amostra para outra.

Em suma, os resultados aqui apresentados permitem afirmar que, para uma mesma granulometria, maiores pressões de compactação propiciam respostas mais diamagnéticas, bem como EFRs com transições mais estreitas e que desligam em temperaturas mais altas. Por outro lado, para uma mesma pressão de compactação em pastilhas com pequena dispersão de tamanho, partículas maiores levam à criação de EFRs mais fortes e a transição intrínseca do material é mais facilmente detectável em medidas magnéticas. Além disso, a obtenção de contribuições positivas à magnetização, características do aprisionamento de fluxo que dá origem ao chamado Efeito Meissner Paramagnético, depende fortemente da dispersão das partículas e da pressão de compactação, bem como da taxa de resfriamento da amostra. Trata-se de um estado metaestável, sensível à aplicação de um campo AC, que faz o papel conhecido como “shaking field” e facilita o desprendimento parcial de fluxo.

Assim, dentro da faixa de parâmetros que experimentamos neste trabalho, para fabricar amostras com bons centros de aprisionamento de fluxo magnético é preferível partir de um pó com partículas grandes e de baixa dispersão de tamanho, e empregar altas pressões de compactação. Como vimos, quando a dispersão de tamanhos é grande, os espaços vazios

são preenchidos por partículas menores e isso faz com que seja pouco eficiente o aprisionamento de fluxo.

Referências Bibliográficas

- ¹ H.K. Onnes, *Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden*; 120 (1911) 12.
- ² W. Meissner, R. Ochsenfeld, *Naturwiss.* 21 (1933) 787.
- ³ V.L. Ginzburg and L.D. Landau, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 20 (1950) 1064.
- ⁴ J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, *Phys. Rev. Letters* 108 (1957) 1175.
- ⁵ A.A. Abrikosov, *JETP*, 5(6) (1957) 1174.
- ⁶ C. P. Poole, H. A. Farach, R. J. Creswick, *Superconductivity*, Academic Press.
- ⁷ A. C. Rose-Innes and E. H. Rhoderick, “*Introduction to Superconductivity*”, Pergamon Press, (1978).
- ⁸ C.V. Deimling, Dissertação de Mestrado, PPG-FÍS/UFSCar, março de (2006).
- ⁹ W.A.C. Passos, Tese de Doutorado, PPG-FÍS/UFSCar –São Carlos, (2001).
- ¹⁰ C. P. Bean, *Phys. Rev. Lett.* 8 (1962) 250.
- ¹¹ C. P. Bean, *Rev. Mod. Phys* 36 (1964) 31.
- ¹² D.-X. Chen and R.B. Goldfarb, *J. Appl Phys.* 66 (1989) 2489.
- ¹³ Y. B. Kim, C. F. Hempstead, A. R. Strnad, *Phys. Rev. Lett.* 9 (1962) 306.
- ¹⁴ Y. B. Kim, C. F. Hempstead, A. R. Strnad, *Phys. Rev.* 129 (1963) 528.
- ¹⁵ K. Fossheim, A. Sudbo, *Superconductivity: Physics and Application*, (2004).
- ¹⁶ T.H. Johansen and H. Bratsberg, *J. Appl Phys*, 77 (1995) 3945.\
- ¹⁷ M. Willemin, C. Rossel, J. Hofer, H. Keller and A. Erb, E. Walker, *Phys. Rev. B*,58 (1998) R5940.
- ¹⁸ M. Willemin, A. Schilling, H. Keller, C. Rossel, J. Hofer, U. Welp, W. K. Kwork, R. J. Olsson, G. W. Crabtree, *Phys. Rev. Lett*, 81 (1998) 4236.

- ¹⁹. N. Avraham, B. Khaykovich, Yu. Myasoedov, M. Rappaport, H. Shtrikman, D. E. Feldman, T. Tamegai, P. H. Kes, M. Li, M. Konczykowski, K. van der Beek, E. Zeldov, *Nature* 411 (2001) 451.
- ²⁰. G. P. Mikitik and E. H. Brandt, *Phys. Rev. B*, 69, (2004) 134521.
- ²¹. A. A. M. de Oliveira – comunicação particular.
- ²². P. Svedlindh, K. Niskanen, P. Norling, L. Lundgren, B. Lönnberg and T. Lundström, *Physica C*, 162-164 (1989) 136.
- ²³. W. Braunich, N. Knauf, S. Neuhausen, A. Grutz, G. Bauer, A. Koch, B. Roden, D. Khomskii and D. Wohlleben, *Phys. Rev. Letters*, 68 (1992) 1908.
- ²⁴. W. Braunich, N. Knauf, G. Bauer, A. Koch, A. Becker, B. Freitag, A. Grutz V. Kataev, S. Neuhausen B. Roden, D. Khomskii and D. Wohlleben, *Phys. Rev. B*, 48 (1993) 4030.
- ²⁵. R. Lucht, H. Vonlohneysen, H. Claus, M. Klaser, G. Mullervogt, *Physical Review B*, 52 (1995) 9724.
- ²⁶. S. Reidling G. Brauchle, R. Lucht, K. Rohberg, H. Vonlohneysen, H. Claus, A. Erb and G. Mullergovt, *Phys. Rev. B*, 49 (1994) 13283.
- ²⁷. G.S. Okram, D.T. Adroja, B.D. Padalia, *Journal of Physics – Condensed Matter*, 9 (1997) L525.
- ²⁸. F.C. Chou, D.C. Johnston, S.W. Cheong, P.C. Canfield, *Physica C*, 216 (1993) 66.
- ²⁹. M.S.M Minhaj, D.J. Thomson, L.E. Wenger and J.T. Chen, *Physica C*, 235-240 (1994) 2519.
- ³⁰. F.W. Kurmastsev, *Physical Review Letters*, 69 (1992) 2268.
- ³¹. W.A.C. Passos, F.M. Araújo-Moreira, W.A. Ortiz, *J. Appl. Phys.*, 87 (2000) 5555.
- ³². W.A.C. Passos, P.N. Lisboa-Filho, W.A. Ortiz, *Physica C*, 341 (2000) 2723
- ³³. W.A. Ortiz, P.N. Lisboa-Filho, W.A.C. Passos, F.M. Araújo-Moreira. *Physica C*, 361 (2001) 267.
- ³⁴. W.A.C. Passos, P.N. Lisboa-Filho, R. Caparroz, et al., *Physica C*, 354 (2001) 189
- ³⁵. W. A. C. Passos, P. N. Lisboa-Filho, R. de Andrade, K. Salama and W. A. Ortiz, *Physica B*, 320 (2002) 330.
- ³⁶. I. Lindau, W.E. Spicer, *J. Appl. Phys.*, 45 (1974) 3720
- ³⁷. F.M. Araújo-Moreira, P. Barbara, A.B. Cawthorne and C. Lobb, *Physical Review Letters*, 78 (1994) 4625.
- ³⁸. P. Barbara, F.M. Araujo-Moreira, A.B. Cawthorne and C. Lobb, *Physical Review B*, 60 (1999) 7489.
- ³⁹. U. Essmann and H. Trauble, *Physics Letters*. 24A (1967) 526.
- ⁴⁰. H. F. Hess, R. B. Robinson, R. C. Dynes, J. M. Valles, Jr., and J. V. Waszczak, *Phys. Rev. Letters*. 62 (1989) 214.
- ⁴¹. L. Ji, R. H. Sohn, G. C. Spalding, C. J. Lobb, M. Thinkham, *Phys. Rev. B* 40 (1989) 10936.
- ⁴². D. LeBlanc e M. A. R. LeBlanc, *Phys. Rev. B* 45 (1992) 5443.
- ⁴³. W. A. Fietz, M. R. Beasley, J. Silcox, W. W. Webb, *Phys. Rev. A* 136 (1964) 335.

⁴⁴. Q. H. Lam, Y. Kim, C. D. Jeffries, *Phys. Rev. B* 42 (1990) 4846.

⁴⁵. M. Xu, D. Shi, R. F. Fox, *Phys Rev. B* 42 (1990) 10773.