

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS

Instituto de Física "Gleb Wataghin"

**Estudo da Relaxação
Magnética e Fluxo Retido
em Nióbio Supercondutor:
Efeitos da Superfície.**

Claudio Antonio Cardoso

*Este exemplar corresponde
à redação final da Tese de
Mestrado defendida pelo aluno
Claudio Antonio Cardoso, e
aprovada pela Comissão
Julgadora.*

CF Lima

Unicamp 22/04/97.

Tese apresentada ao Instituto de Física "Gleb Wataghin" como pré-requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Física.

Orientador:

Oscar Ferreira de Lima
Instituto de Física "Gleb Wataghin"

Campinas, fevereiro de 1997

100
7
11
100
0197
88913.2

**FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP**

C179e

Cardoso, Claudio Antonio
Estudo da relaxação magnética e fluxo retido
em nióbio supercondutor: efeitos da superfície
/ Claudio Antonio Cardoso. -- Campinas, SP :
[s.n.] , 1997.

Orientador: Oscar Ferreira de Lima.
Dissertação (mestrado) - Universidade
Estadual de Campinas, Instituto de Física "Gleb
Wataghin".

1. Supercondutividade. 2. *Relaxação magnética, efeitos da superfície. 3. Aprisionamento de fluxo. 4. Nióbio. I. Oscar Ferreira de Lima. II. Universidade Estadual de Campinas. Instituto de Física "Gleb Wataghin". III. Título.



INSTITUTO DE FÍSICA
GLEB WATAGHIN

PARECER DE APROVAÇÃO DEFESA DE TESE DE MESTRADO DE CLÁUDIO ANTONIO CARDOSO

Data: 18 / 02 / 97

BANCA EXAMINADORA:

- Prof. Dr. Oscar Ferreira de Lima (Orientador)

- Prof. Dr. Wilson Aires Ortiz

- Prof. Dr. Sérgio Moehlecke

Aos meus pais,
pelo apoio incondicional.

Agradecimentos

Ao Prof. Dr. Oscar F. de Lima por sua orientação, não apenas no aspecto acadêmico.

Aos professores Sérgio Moehlecke e Yakov Kopelevich, pelas discussões e sugestões fundamentais para o desenvolvimento deste trabalho.

Aos colegas Marcos Avila e Raquel Ribeiro, por todo o apoio e camaradagem.

Aos funcionários do LMBT Maria del Carmen Zulueta, Walter Valongo, Orival da Silva, Célia Barbutti e Cleusa Barnabé, pelo apoio técnico e administrativo.

Aos amigos de toda hora Marcos Jardim, Alessandro Moura, Daniel Jonathan, Eduardo Peres e Marcelo Terra Cunha, que tornaram estes anos em Campinas tão interessantes.

Finalmente, meus mais sinceros agradecimentos a Marcela Redígolo, Érica Tsujiguchi e Paula Sampaio, que muito me incentivaram nos momentos mais difíceis deste trabalho.

Este trabalho foi parcialmente financiado pelo CNPq e FAPESP.

Resumo

Apresentamos neste trabalho um estudo da influência da superfície na relaxação magnética em nióbio supercondutor. Discutimos também a relevância do estado da superfície da amostra na retenção de fluxo magnético e no surgimento de um estado paramagnético associado à retenção de fluxo na amostra. Realizamos medidas de magnetização, utilizando um magnetômetro SQUID, em uma barra monocristalina de nióbio. As medidas de magnetização foram feitas para diferentes estados da superfície. Utilizando o modelo de relaxação magnética proposto por Anderson-Kim em 1964, obtivemos a energia de ativação efetiva para diversas condições de campo magnético aplicado e temperatura para cada estado da superfície. Comparando os resultados obtidos para os diferentes estados da superfície, tentamos distinguir as contribuições volumétrica e superficial da energia de ativação. Observamos nas medidas de relaxação magnética uma assimetria entre entrada e saída de fluxo da amostra, assimetria esta que em geral é reduzida com a deterioração da superfície, o que é condizente com os resultados obtidos por Burlachkov para barreira superficial. Verificamos, entretanto, que considerando apenas efeitos decorrentes da influência da barreira superficial, não é possível explicar a totalidade dos resultados que obtivemos. Concluímos que, com o lixamento da superfície, surge uma casca superficial de material danificado que apresenta um fator de Ginzburg-Landau (κ) mais alto que o interior da amostra. A influência desta casca de κ mais alto acaba por mascarar o efeito da barreira superficial nas medidas de magnetização. Associamos também a presença desta casca com o aumento do valor de H_{c2} , com a degradação da superfície, observado nas curvas $M \times H$. Finalmente, discutimos o aparecimento próximo à transição supercondutora em curvas $M \times T$ de um pequeno patamar paramagnético, sendo que o lixamento tende a ampliar este patamar. Interpretamos este efeito como sendo causado pela retenção de fluxo no material devido não apenas ao aprisionamento volumétrico, mas também devido a presença da camada de alto κ . Para reforçarmos esta hipótese, realizamos uma nova série de medidas feitas agora em um anel de nióbio policristalino. Verificamos assim que o máximo paramagnético observado depende fortemente da geometria da amostra, como seria esperado no modelo de fluxo retido.

Abstract

We present in this work a study of the surface influence in magnetic relaxation of superconducting niobium. We also discuss the relevance of the sample surface condition on magnetic flux trapping associated with the occurrence of a paramagnetic frozen state. Magnetization measurements were made, using a SQUID magnetometer, on a single-crystal Nb bar, for different sample surface conditions. Using the model for magnetic relaxation proposed by Anderson-Kim in 1964, we obtained the effective activation energy for some applied magnetic fields and temperatures, for each surface condition. Comparing the results obtained in this way, we tried to separate the surface and bulk contributions to the activation energy. We observed an asymmetry between flux entry and exit in the magnetic relaxation measurements. This asymmetry diminished with surface roughening, which is in agreement with theoretical results obtained by Burlachkov for surface barrier effects. However, the influence of the surface barrier alone cannot explain all of our data. We conclude that the surface roughening with sandpaper created a superficial layer of damaged material which have a higher Ginzburg-Landau factor (κ) than the bulk material. The influence of this high- κ layer masks the effects of the surface barrier in magnetization measurements. We propose the increase of H_{c2} with the surface roughening, found in $M \times H$ measurements, is a consequence of the high- κ layer. Finally, we discuss the occurrence of a small paramagnetic maximum near the superconducting transition in $M \times T$ data. The surface roughening tends to increase this paramagnetic maximum. We propose that this effect is caused by flux trapping due to the presence of the high- κ layer. To confirm this hypothesis we made a new set of measurements on a polycrystal Nb ring. We found that the paramagnetic maximum is highly dependent of the sample geometry, as expected in the flux trapping picture.

Conteúdo

1	Introdução	7
2	Aspectos Teóricos	11
2.1	Dinâmica da Rede de Vórtices	11
2.1.1	Forças de Lorentz e de Magnus	11
2.1.2	Interação entre linhas de fluxo	14
2.1.3	Forças de aprisionamento ou <i>pinning</i>	15
2.2	O Conceito de Estado Crítico: os Modelos de Bean e de Kim	19
2.3	Arrastamento de Fluxo Termicamente Ativado (flux creep): o Modelo de Anderson-Kim	21
2.3.1	Escalas de tempo em relaxação magnética	23
2.4	Influência da Barreira Superficial	26
3	Procedimento Experimental	31
3.1	Equipamento	32
3.1.1	Limitações do equipamento	33
3.1.2	Histórias termo-magnéticas das medidas de magnetização	37
3.1.3	Caracterização da amostra	40
3.1.4	Suporte de amostra	44
3.2	Resultados Experimentais	45
3.2.1	Introdução	45
3.2.2	Apresentação dos resultados	48
3.2.3	Em busca de outras evidências para a barreira superficial	55

4	Momento Paramagnético Congelado	64
4.1	Introdução	64
4.2	Procedimento Experimental	67
4.2.1	Equipamento	67
4.3	Observação de momento paramagnético em nióbio	70
4.3.1	Barra monocristalina	70
4.3.2	Anel policristalino	74
5	Conclusão	81

Capítulo 1

Introdução

Uma das características mais marcantes dos materiais supercondutores é sua capacidade de expulsar completamente o campo magnético do seu interior, propriedade esta que ficou conhecida como Efeito Meissner, e foi dentro do paradigma do diamagnetismo perfeito que o estudo dos materiais supercondutores foi conduzido nas primeiras décadas após a descoberta deste efeito em 1933. Os conceitos de diamagnetismo perfeito e supercondutividade foram rapidamente associados de uma forma indissolúvel e a crença em ser esta uma propriedade básica de todos os supercondutores colaborou para que o comportamento anômalo apresentado por certos materiais supercondutores, particularmente ligas e materiais impuros, fosse considerado como mero efeito relacionado às impurezas, sem despertar um maior interesse na época. O trabalho de A. Abrikosov [1], publicado em 1957, veio lançar uma nova luz sobre esta questão.

Abrikosov defendia a idéia de que estes materiais “anômalos” poderiam constituir uma nova classe de supercondutores com propriedades intrinsecamente diferentes, não cabendo unicamente às impurezas a responsabilidade pelo comportamento estranho destes materiais. A idéia de Abrikosov baseava-se no fato destes materiais apresentarem uma energia de superfície negativa ou, em outras palavras, para estes materiais pode ser energeticamente favorável a criação de uma interface supercondutor-estado normal. Assim, quando estes materiais são submetidos a um campo magnético superior a um campo crítico característico do material, H_{c1} , ocorre a penetração quantizada de campo no interior da amostra na forma de tubos de fluxo magnético (tratados usualmente como *fluxóides*). Cada fluxóide contém um quantum de fluxo magnético $\varphi_0 = hc/2e \simeq 2,07 \times 10^{-7} \text{ Gcm}^2$, sendo que o campo magnético local atinge seu valor máximo

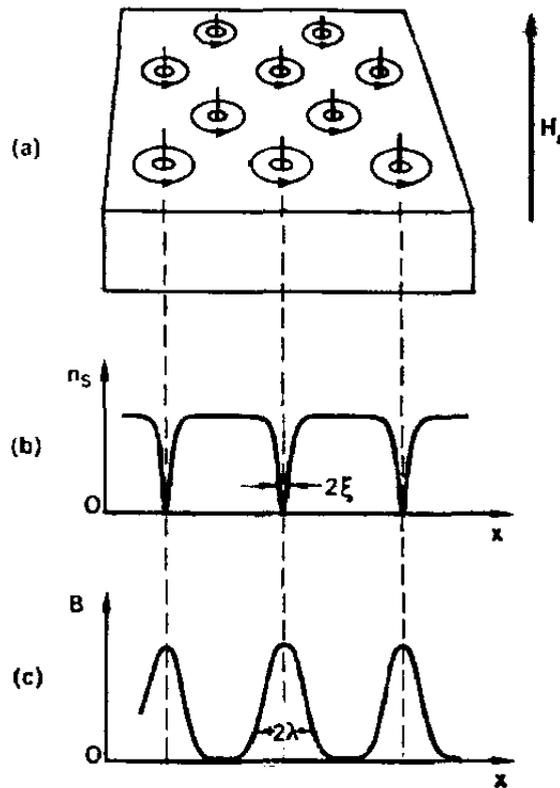


Figura 1-1: Esquema da estrutura de um fluxóide indicando a variação da densidade de superelétrons e do campo local com a distância ao centro do vórtice (extraído de [31]).

no centro do vórtice e decai exponencialmente devido a uma corrente de blindagem, num raio da ordem da distância de penetração λ . Por outro lado, a densidade de superelétrons vai a zero no centro do fluxóide e atinge seu valor máximo num raio da ordem do comprimento de coerência ξ . Uma descrição aproximada destes “tubos de fluxo” é considerá-los como sendo formados por um núcleo normal de raio ξ e cujo campo cai exponencialmente até zero em $r = \lambda$ (ver figura 1-1). Devido a estas mesmas correntes de blindagem a interação entre os fluxóides é repulsiva. Assim os fluxóides tendem a se distribuir uniformemente por toda a amostra, buscando a maior distância possível dos seus vizinhos. Abrikosov mostrou que para um material homogêneo a configuração de equilíbrio dos fluxóides corresponde a uma rede hexagonal, hoje conhecida como *rede de vórtices ou rede de Abrikosov*.

A movimentação desta rede de vórtices é um assunto de grande interesse prático (e acadêmico) que tem sido exaustivamente discutido na literatura. Este interesse é, em grande parte, devido ao fato de que a movimentação de fluxo no material supercondutor gera uma dissipação de energia, que por sua vez pode alimentar instabilidades térmicas podendo levar numa autoalimentação catastrófica todo o material para o estado normal. Certamente não é o tipo de propriedade que queremos num material para aplicação tecnológica.

Se o estudo da relaxação magnética nos supercondutores clássicos já era uma área de intenso trabalho, com a descoberta dos supercondutores de alta temperatura houve um verdadeiro “boom” nesta área. Não apenas temperaturas mais altas entraram em cena, tornando a ativação térmica de coadjuvante para a grande regente do movimento de fluxo, mas a própria anisotropia característica das cerâmicas supercondutoras trouxe uma gama de novos efeitos e novos regimes. Um dos efeitos que ganhou grande destaque com os materiais de alta temperatura crítica, ainda que já fosse estudado nos materiais clássicos, foi a influência da superfície no comportamento magnético dos supercondutores. Isto porque a importância da barreira superficial é maior na região de altas temperaturas e as propriedades intrínsecas do material (tal como apresentar um alto κ), fazem com que a contribuição da superfície seja mais facilmente discernível. A grande dificuldade em realizar um estudo sistemático sobre efeitos da superfície na magnetização destes materiais está na dificuldade em se produzir monocristais grandes. Assim, tanto o sinal da amostra é, em geral, pequeno (e portanto distinguir apenas uma parte dele pode vir a ser uma tarefa ingrata) como as amostras são frágeis, sendo necessárias técnicas mais sofisticadas para alterar a superfície destes materiais.

Neste trabalho procuramos discutir a importância dos efeitos da superfície, em particular nas medidas de relaxação magnética, abordando não apenas a presença da barreira de Bean-Livingston como também a influência que defeitos superficiais introduzidos com a degradação da superfície possam ter nestes resultados. Faremos primeiramente uma breve introdução teórica, abordando os aspectos essenciais da dinâmica de vórtices e da interação destes com os defeitos do material supercondutor. Isto nos levará então a abordar a idéia de propriedades irreversíveis e ao conceito de estado crítico, chegando então, com a introdução da ativação térmica, ao modelo de relaxação magnética de Anderson-Kim. A seguir introduziremos a influência da superfície discutindo a origem da barreira superficial de Bean-Livingston, apresentando suas

principais características. Uma vez completa esta discussão teórica, apresentaremos os resultados que obtivemos no estudo da barreira superficial em uma barra monocristalina de nióbio a qual submetemos a vários tratamentos da superfície. Apresentaremos por fim a observação de momento paramagnético congelado para esta amostra, assim como para um anel de nióbio policristalino, e discutiremos a relação entre o aparecimento deste sinal paramagnético com fluxo retido no material devido a degradação da superfície.

Capítulo 2

Aspectos Teóricos

2.1 Dinâmica da Rede de Vórtices

2.1.1 Forças de Lorentz e de Magnus

O modelo da rede de Abrikosov descreve a situação de equilíbrio para um material ideal, que apresenta uma certa distribuição espacial de corrente elétrica. No entanto, quando o sistema está fora de equilíbrio (logo após uma brusca variação do campo externo, por exemplo) ou quando aplicarmos uma corrente de transporte no material, esta distribuição de corrente é modificada, e é da interação dos fluxóides com esta densidade de corrente de não-equilíbrio que surgirão forças agindo sobre o fluxóide que tenderão a levar o sistema para uma nova condição de equilíbrio. Faremos então neste capítulo uma revisão deste assunto, baseados nas referências [18] e [37].

Consideremos um supercondutor isotrópico submetido a um campo externo $\vec{B} = B\hat{z}$ e no qual aplicamos uma densidade de corrente $\vec{J}_x = J_x\hat{x}$. Forças passam a agir sobre o vórtice que se move dentro do supercondutor com uma velocidade \vec{v}_φ (ver figura 2-1).

Se agora escrevemos a densidade de corrente na amostra, *a partir do referencial do fluxóide*, temos

$$\vec{J}_{ef} = n_s e (\vec{v}_x - \vec{v}_\varphi)$$

onde n_s é a densidade de superelétrons por unidade de volume e e a carga do elétron. Temos

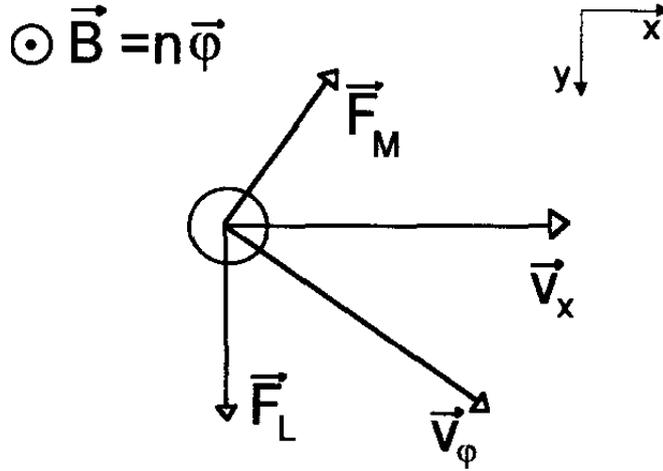


Figura 2-1: Diagrama esquemático indicando as forças que agem sobre um vórtice em movimento. F_L é a força de Lorentz devida a correntes externas e F_M é a força de Magnus.

então uma densidade de força por unidade de volume

$$\vec{F} = \frac{\vec{J}_{ef} \times \vec{\varphi}}{c} = \frac{1}{c} (\vec{J}_x \times \vec{\varphi}) - \frac{n_s e}{c} \vec{v}_\varphi \times \vec{\varphi} \quad (2.1)$$

O primeiro termo a direita, que é simplesmente a força de Lorentz total sobre o fluxóide parado, pode ser escrito de uma forma mais ilustrativa

$$\frac{1}{c} (\vec{J}_x \times \vec{\varphi}) = \frac{1}{nc} (\vec{J}_x \times \vec{B}) = \frac{\mu}{nc} (\vec{J}_x \times \vec{H})$$

onde foi usado que $\vec{B} = n\vec{\varphi}$, onde n é a densidade de fluxóides por unidade de área. Utilizando a eq. de Maxwell $\vec{J} = c/4\pi \nabla \times \vec{H}$, obtemos

$$\begin{aligned} \frac{\mu}{nc} (\vec{J}_x \times \vec{H}) &= -\frac{\mu}{4\pi n} (\vec{H} \times \nabla \times \vec{H}) \\ &= -\frac{\mu}{4\pi n} \left(\frac{1}{2} \nabla (\vec{H} \cdot \vec{H}) - (\vec{H} \cdot \nabla) \vec{H} \right) \end{aligned}$$

e finalmente

$$\frac{1}{c} (\vec{J}_x \times \vec{\varphi}) = -\nabla \left(\frac{\mu H^2}{8\pi} \right) + \frac{\mu}{4\pi} (\vec{H} \cdot \nabla) \vec{H}$$

Observe que o primeiro termo da direita, na expressão acima, pode ser pensado como uma

pressão magnética que age sobre o fluxóide na direção do gradiente de campo, enquanto o segundo termo da direita está associado a uma tensão ao longo do fluxóide, que é proporcional à deformação sofrida pelo mesmo. Isto significa que a força de Lorentz age sobre os vórtices de forma a reduzir o gradiente de campo na amostra e também a curvatura das linhas de campo.

O segundo termo da direita na expressão (2.1) pode ser derivado compondo a densidade de corrente de blindagem do vórtice com a corrente externa, que resulta numa pressão magnética. Por analogia ao caso hidrodinâmico, equivalente de um corpo que gira se deslocando num meio viscoso, esta força é conhecida como *Força de Magnus*. Veja que esta é uma força sempre perpendicular à velocidade do fluxóide.

Temos também uma força que se opõe à movimentação dos fluxóides, conhecida como *força de aprisionamento ou de pinning*. Nós analisaremos a origem desta força com mais detalhes na próxima seção. Por hora nos basta saber que imperfeições do material geram depressões locais na energia livre das linhas de fluxo, que tendem a ficar presas nestes *centros de aprisionamento*. Estes centros exercem uma força por unidade de comprimento do fluxóide f_p que se opõe à movimentação das linhas de campo.

Considerando agora que a movimentação do fluxo sofre ainda o efeito de uma força de amortecimento viscosa $\eta \vec{v}_\varphi$ e supondo que estejamos numa situação estacionária, temos finalmente que a movimentação dos fluxóides é dada pela equação

$$\frac{1}{c} \left(\vec{J}_x \times \vec{\varphi} \right) - f \frac{n_s e}{c} \vec{v}_\varphi \times \vec{\varphi} - \eta \vec{v}_\varphi - \vec{f}_p = 0 \quad (2.2)$$

onde η é a viscosidade. O fator f foi introduzido por Van Vijfeijken [38] para generalizar a idéia da força de Magnus, indicando o quanto ela é ativa. A direção de movimentação dos fluxóides depende, portanto, dos parâmetros f e η .

Uma consequência do movimento de fluxo gerado pela força de Lorentz, de fundamental importância para qualquer projeto de aplicação tecnológica de um supercondutor tipo II, é que o movimento da rede de vórtices induz um campo elétrico

$$\vec{E} = \vec{B} \times \frac{\vec{v}_\varphi}{c} \quad (2.3)$$

Se a componente transversal da velocidade dos vórtices $v_{\varphi y}$ for não nula, como é usualmente o

caso, teremos então uma voltagem longitudinal resistiva, o que provoca dissipação de energia. Temos então a situação de um material supercondutor que apresenta uma resistência não nula (*resistência de “flux flow”*) e, em alguns casos, sequer desprezível. Entretanto, ignorando a força de pinning na equação (2.2) e considerando $f = 1$ por simplicidade, vemos que a velocidade resultante $\vec{v}_x - \vec{v}_\varphi$ deve ser perpendicular a \vec{v}_φ (caso contrário a equação (2.2) só admitiria a solução trivial). Segue diretamente que a componente $v_{\varphi y}$ não pode ser maior que $v_x/2$, independentemente do valor de η . Isto significa que para um certo valor da densidade de corrente há um limite para esta resistência de “flux flow”.

A movimentação dos vórtices pode gerar também uma voltagem Hall transversal devida exclusivamente à componente $v_{\varphi x}$ e esta voltagem é máxima para o caso não viscoso $\eta = 0$, onde $\vec{v}_\varphi \rightarrow \vec{v}_x$ (o que significa que os fluxóides estão sendo “arrastados” junto com a corrente externa). Neste caso o campo elétrico longitudinal é zero, havendo apenas o campo Hall transversal. Observe ainda que, como a força de Lorentz é sempre perpendicular à direção da corrente externa, a voltagem Hall deve-se exclusivamente à força de Magnus. O caso oposto ocorre para $f = 0$, quando os fluxóides movem-se perpendicularmente a corrente aplicada produzindo apenas o campo elétrico longitudinal.

2.1.2 Interação entre linhas de fluxo

No item anterior tratamos da interação dos fluxóides com a densidade de corrente de não-equilíbrio. No entanto, isto é um recurso analítico, já que o vórtice não tem como distinguir entre correntes devidas aos demais fluxóides e a corrente externa aplicada. O que analisaremos agora é justamente o outro lado da história: a interação entre os fluxóides apenas.

Começemos nossa discussão determinando a expressão para o campo local associado a um fluxóide. Considerando a equação de London corrigida pela presença do fluxóide na posição \vec{r}_l [18]

$$\frac{4\pi\lambda^2}{c} \nabla \times \vec{J} + \vec{h} = \hat{z}\varphi_0\delta_2(\vec{r} - \vec{r}_l) \quad (2.4)$$

Usando a equação de Maxwell $\nabla \times \vec{h} = 4\pi\vec{J}/c$ e considerando que $\nabla \cdot \vec{h} = 0$, obtemos de (2.4)

$$\nabla^2 \vec{h} - \frac{\vec{h}}{\lambda^2} = -\frac{\varphi_0}{\lambda^2} \delta_2 \hat{z}$$

A solução desta equação é bem conhecida

$$h(r) = \frac{\varphi_0}{2\pi\lambda^2} K_0\left(\frac{r}{\lambda}\right) \quad (2.5)$$

Consideremos agora dois vórtices isolados nas posições \vec{r}_1 e \vec{r}_2 . O aumento na energia livre por unidade de comprimento dos vórtices devido ao campo associado ao outro vórtice seria, por simetria

$$\Delta F = \frac{\varphi_0}{8\pi} [h_1(\vec{r}_2) + h_2(\vec{r}_1)] = \frac{\varphi_0}{4\pi} h_1(\vec{r}_2) \quad (2.6)$$

Esta seria a energia de interação entre os vórtices. Para obtermos a força entre estes dois vórtices então basta tomar a derivada espacial de (2.6). Considerando o eixo x coincidindo com a reta que une os dois vórtices temos para a componente x da força sobre o segundo vórtice

$$f_{2x} = -\frac{\varphi_0}{4\pi} \frac{\partial h_1(\vec{r}_2)}{\partial x_2} = \frac{\varphi_0}{c} J_{1y}$$

Voltando para a forma vetorial

$$\vec{f}_2 = \vec{J}_1(\vec{r}_2) \times \frac{\vec{\varphi}_0}{c} \quad (2.7)$$

Considerando agora um conjunto de vórtices, podemos superpor o resultado (2.7) para cada um dos vizinhos e chegar ao resultado para a força total sentida por um vórtice-teste, devido a sua interação com seus vizinhos

$$\vec{f} = \vec{J}_f \times \frac{\vec{\varphi}_0}{c}$$

onde \vec{J}_f representa a soma da densidade de corrente devida a todos os vizinhos no local do vórtice-teste. Como seria de se esperar, esta é a expressão da força de Lorentz sobre o vórtice-teste gerada pela parte da densidade de corrente total devida aos vórtices apenas.

2.1.3 Forças de aprisionamento ou *pinning*

Em um material com a rede cristalina perfeita o fluxóide move-se livremente, arrastado pelas forças discutidas nas seções anteriores. A presença de inhomogeneidades no material, entretanto, pode gerar depressões locais na energia livre do fluxóide e assim retê-lo na sua vizinhança. São, portanto, chamados de centros de aprisionamento. Há varias formas de interação entre estas

inomogeneidades e os vórtices que levam a este resultado. Vamos então apresentar rapidamente estas interações para depois seguir com a discussão sobre forças de aprisionamento.

1. Interação com o núcleo do vórtice

Como já foi dito anteriormente, o núcleo do vórtice (no modelo simplificado adotado aqui) consiste numa região normal de raio ξ , sendo que a energia de condensação que é dispendida para gerar este núcleo normal, por unidade de comprimento do vórtice, seria

$$E_{core} = \frac{H_c^2}{8\pi} \pi \xi^2$$

No entanto, se alguma parte do núcleo do vórtice estiver em uma região normal ou onde o parâmetro de ordem seja menor do que seu valor regular (como, por exemplo, no caso de uma inclusão normal), parte desta energia é “poupada”, o que faz com que seja energeticamente favorável para o vórtice permanecer nesta região. A força de aprisionamento máxima por unidade de comprimento, neste caso, seria então

$$f_{p_{core}} = \nabla E_{core} \approx \frac{E_{core}}{\xi} = \frac{H_c^2 \xi}{8}$$

2. Interação magnética

Quando trabalhamos com uma rede de vórtices, temos de considerar a interação do vórtice com os campos e densidades de corrente locais. Algumas inomogeneidades podem modificar a distribuição local de campo magnético e densidade de corrente, alterando assim a energia livre do sistema. Um exemplo de centro de aprisionamento com esta característica seria a presença de uma inclusão isolante. A condição de contorno para a densidade de corrente na superfície da inclusão é a mesma que para a interface normal-supercondutor, equivalente ao caso eletrostático de uma carga elétrica próxima a um plano condutor. Analogamente a estes casos (ver seção 2.4), temos atração do vórtice pela sua imagem espelhada na superfície da inclusão. Podemos obter a força de interação magnética usando esta idéia como sendo

$$f_{p_{mag}} = \frac{\varphi_0 H_{c1}}{4\pi \lambda}$$

3. Interação elástica

No estado supercondutor a densidade e as constantes elásticas do material são ligeiramente menores do que no estado normal. Assim, o núcleo do fluxóide é um pouco mais denso e rígido do que o material ao seu redor, gerando uma certa tensão mecânica que interage com os defeitos do próprio material.

Enquanto consideramos os centros de aprisionamento como tendo origem nas inhomogeneidades introduzidas aleatoriamente no material, é razoável supor que tenhamos uma distribuição uniforme dos centros de aprisionamento no material. Podemos então definir uma *densidade de pinning constante* em toda amostra. A força de aprisionamento por unidade de volume pode então ser escrita como $\vec{F}_p = n\vec{f}_p$, onde \vec{f}_p é a força de aprisionamento por unidade de comprimento do vórtice e n é a densidade de vórtices. É interessante definir esta densidade de força de aprisionamento pois, como apontado por Anderson[2], consideraremos que os vórtices movem-se sempre em pacotes ou feixes de N fluxóides¹ e não por fluxóides isolados. Esta idéia do feixe de fluxo como a unidade dinâmica na movimentação de vórtice está relacionada com a interação entre os fluxóides e leva-nos ao conceito de pinning coletivo. Quando dizemos que a rede de vórtices está aprisionada, não significa necessariamente que todas as linhas de campo estão presas. De fato, apenas algumas linhas estão localmente presas nos centros de aprisionamento, mas devido ao comportamento coletivo da rede, o resultado é que tudo se passa como se o pacote todo estivesse aprisionado e, de pacote em pacote, a rede como um todo fica aprisionada. Outra consequência direta da uniformidade na distribuição dos centros de aprisionamento é o fato de uma rede composta de vórtices rígidos apresentar uma força de aprisionamento média nula, já que na média o vórtice é atraído por uma distribuição uniforme de centros de aprisionamento, resultando numa força de pinning média nula, como podemos visualizar na figura 2-2. Se o fluxóide é flexível, ele pode se moldar de forma a ajustar-se aos centros de pinning ao seu redor, maximizando assim o seu aprisionamento. Fica claro então que a eficiência do aprisionamento depende crucialmente das propriedades elásticas da rede de

¹A força de interação entre os fluxóides pode ser escrita de acordo com Abrikosov [1] na forma $F_{int} = H_c^2/4\kappa^2 \sum K_0 (|\vec{r}_i - \vec{r}_j|/\lambda)$. Como K_0 tem uma variação logarítmica para $r \rightarrow 0$ enquanto que para $r \rightarrow \infty$ temos $K_0 \sim e^{-r/\lambda}$, vemos que variações locais na densidade de vórtices é muito desfavorável energeticamente. Assim esperamos que só tenhamos inhomogeneidades na distribuição de campo numa escala maior que λ . Daí a idéia que somente o movimento coletivo de um feixe de fluxóides é possível.

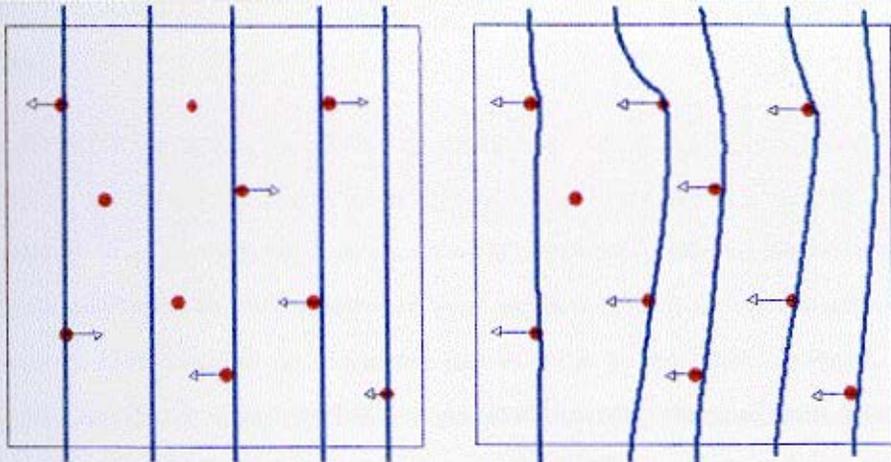


Figura 2-2: Distribuição das forças de pinning para o caso de vórtices rígidos (a) e flexíveis (b), para a rede de vórtices movendo-se da esquerda para a direita.

vórtices. As propriedades elásticas dos fluxóides foram extensamente discutidas por Brandt (ver, por exemplo [9]), mas não entraremos em maiores detalhes neste trabalho.

Outro fator que deve ser considerado é o chamado “depinning térmico”. Vimos que a intensidade da força de aprisionamento depende fortemente da posição do vórtice em relação ao centro de aprisionamento. Assim, no caso da interação com o núcleo do vórtice, quanto maior for a sobreposição do núcleo do vórtice com o centro de aprisionamento, tanto maior será a força de pinning. No entanto, para temperaturas não nulas, os fluxóides apresentam uma oscilação em torno do ponto de equilíbrio. Desta forma, quando a amplitude das oscilações se torna maior que o núcleo do vórtice, $\langle u^2 \rangle_{\text{term.}} > \xi^2$, a sobreposição do núcleo do fluxóide com o centro de pinning oscila no tempo e, na média, o vórtice sentirá um potencial menor do que sentiria se estivesse parado, “encaixado” da melhor forma possível no centro de aprisionamento. Eventualmente, para temperaturas suficientemente altas, esta ativação térmica pode realmente anular o aprisionamento, liberando a rede de vórtices, que passaria a se mover livremente no material. Este regime de escoamento de fluxo é conhecido como *escoamento de fluxo termicamente assistido* e voltaremos a este assunto mais adiante.

2.2 O Conceito de Estado Crítico: os Modelos de Bean e de Kim

Vimos na seção 2.1.1 que sobre uma linha de vórtice, devido a sua interação com a densidade de corrente local, atuam forças que tendem a movimentá-lo de forma a reduzir o gradiente de campo magnético. A magnetização neste caso seria reversível e não teríamos fluxo retido. No entanto, devido as forças de aprisionamento (ver seção 2.1.3), a movimentação dos fluxóides na amostra não é livre e antes de conseguir movimentar os vórtices, é preciso soltá-los dos centros de aprisionamento. Isto significa que podemos manter um gradiente de campo dentro da amostra desde que a densidade de corrente em todo o material seja menor que uma densidade de corrente crítica J_c definida de forma que a força de Lorentz por unidade de volume seja igual a força de aprisionamento por unidade de volume

$$\frac{\vec{J}_c \times \vec{B}}{c} = \vec{F}_p(B) \quad (2.8)$$

em todo o material. Quando isto ocorre dizemos que nossa amostra está no *Estado Crítico*, já que esta é uma situação de equilíbrio metaestável, uma vez que a força de Lorentz está no limiar para arrancar os vórtices dos centros de aprisionamento. Qualquer pequena perturbação do sistema (tal como a ativação térmica) poderá induzir a movimentação de fluxo. Partindo de (2.8) e utilizando a equação de Maxwell $\nabla \times \vec{H} = 4\pi \vec{J}/c$ obtemos

$$\frac{\nabla \times \vec{H} \times \vec{B}}{4\pi} = \vec{F}_p(B) \quad (2.9)$$

que, no caso unidimensional de uma placa infinita, orientada no plano xz de tal forma que $\vec{B} = B\hat{z}$, podemos escrever (2.9) como

$$\frac{1}{4\pi} \frac{\partial H}{\partial y} B = \frac{1}{4\pi} \frac{\partial H}{\partial B} \frac{\partial B}{\partial y} B = F_p(B) \quad (2.10)$$

A expressão acima comprova a idéia inicial de que um gradiente de campo magnético pode ser mantido no material, impossibilitando o equilíbrio termodinâmico e fazendo com que as propriedades magnéticas do material sejam *irreversíveis*. A partir da equação (2.10) podemos

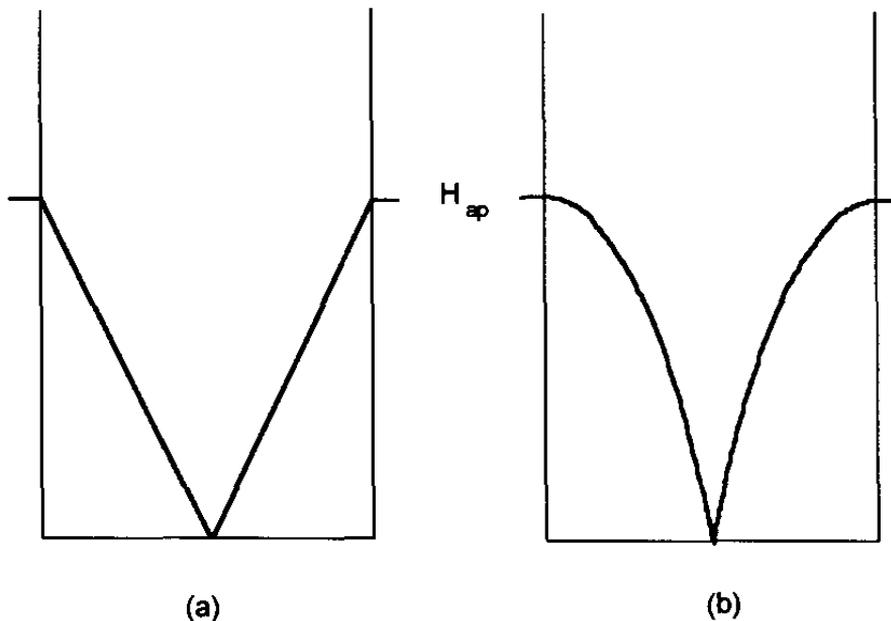


Figura 2-3: Perfis de campo previstos pelos modelos de (a) Bean e (b) Kim.

então obter o perfil de campo $B(y)$ no interior da amostra, desde que seja conhecida a dependência da densidade da força de aprisionamento com B . Temos então dois modelos que são usualmente adotados. No *Modelo de Bean*, assume-se que a força de pinning seja proporcional ao campo, $F_p \sim B$, implicando num perfil de campo linear, $\partial B/\partial y = cte$. Uma outra forma de se colocar o modelo de Bean é dizer que a densidade de corrente em um dado ponto do material só pode assumir um de três valores possíveis: J_c , $-J_c$ ou 0 (ver figura 2-3(a)). Já o *Modelo de Kim* considera a força de pinning como sendo independente de B de tal forma que $B\partial B/\partial y = cte$ (estamos considerando implicitamente que $B \approx H$), ou seja, assume um perfil de campo curvo. Todo o desenvolvimento teórico que se segue utiliza o modelo de Bean para descrever o perfil de campo no interior da amostra.

2.3 Arrastamento de Fluxo Termicamente Ativado (flux creep): o Modelo de Anderson-Kim

De acordo com o que vimos até aqui, o perfil de campo numa amostra supercondutora pode variar temporalmente de forma a reduzir o gradiente de campo por toda a amostra, devido a força de Lorentz, até que se atinja o estado crítico, quando então a pressão magnética é compensada pelas forças de aprisionamento e as linhas de fluxo ficam retidas nos centros de pinning. Esta é uma configuração de equilíbrio, já que as forças que agem sobre a rede de vórtices estão exatamente equilibradas². No entanto, como trabalhamos a temperaturas finitas (no caso dos HTSC com temperaturas relativamente altas até), não podemos desconsiderar o efeito de ativação térmica. Acrescentando este efeito veremos que pode ocorrer movimentação de fluxo mesmo no estado subcrítico, quando $J < J_c$. Esta idéia foi estudada inicialmente por Anderson e Kim[2] e posteriormente por Beasley et al.[6], utilizando o modelo de estado crítico proposto por Bean [4]. A discussão que apresentaremos aqui segue proximamente a apresentada por Hagen e Griessen [17] e Beasley et al. Uma interessante discussão nesses mesmos moldes foi apresentada por Feigel'man et al.[15].

Vamos considerar que um supercondutor encontra-se no estado crítico, tal como definido por Bean, para o tempo $t = 0$, e que o processo de relaxação magnética ocorre através de saltos das linhas de fluxo por sobre barreiras de energia que separam centros de aprisionamento adjacentes. Se não houvesse um gradiente de campo local, de modo que a força de Lorentz seja nula, a energia de ativação seria a mesma em todas as direções, assim como a frequência de saltos dos fluxóides. Desta forma o número de fluxóides saltando para a direita, grosseiramente falando, se igualaria com o número de fluxóides saltando para a esquerda. Se tivermos, no entanto, uma densidade de corrente J associada a um gradiente de campo, a força de Lorentz que age sobre este feixe de linhas de fluxo seria então $F_L = BJV/c$, sendo B o campo local e V o volume do feixe de vórtices. A energia de ativação neste caso não seria mais homogênea, mas teríamos uma redução no seu valor na direção do gradiente do campo (como esquematizado na figura 2-4(b)). Considerando o caso unidimensional por simplicidade, para o qual a densidade

²Trata-se de um equilíbrio de forças metaestável; o equilíbrio termodinâmico só seria obtido com uma distribuição uniforme de campo em toda a amostra.

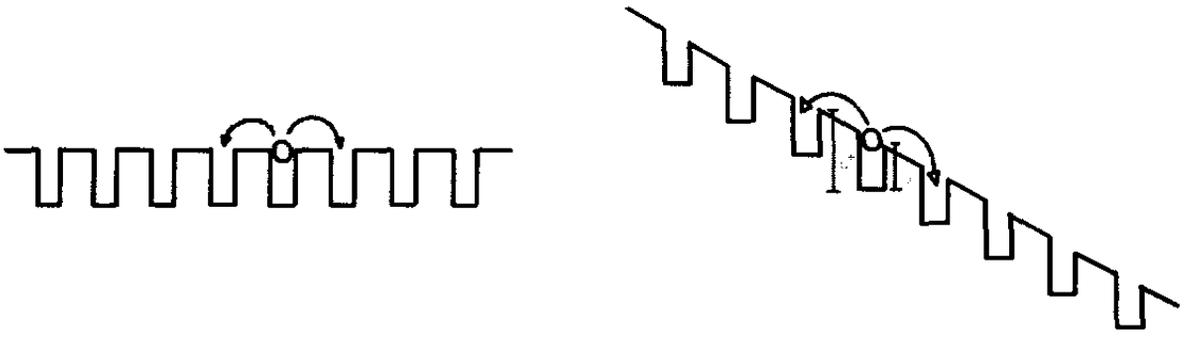


Figura 2-4: Esquema do potencial efetivo sentido pelo vórtice causado por um arranjo unidimensional de centros de aprisionamento igualmente espaçados e de mesma intensidade quando tem (b) ou não (a) um gradiente de campo dentro da amostra.

de corrente é simplesmente $J = c/4\pi(\partial B/\partial x)$, obtemos que a energia de ativação efetiva pode ser escrita como [17]

$$U^\pm = U \pm 2x_0V \frac{B}{4\pi} \frac{\partial B}{\partial x}$$

onde $2x_0$ é a largura da barreira e o sinal é dado pela direção do salto (contra ou a favor do gradiente de campo). A taxa de saltos entre dois centros de aprisionamento adjacentes m e $m + 1$ pode ser expressa na forma da expressão de Arrhenius

$$P_{m+1 \rightleftharpoons m} = \nu_0 e^{-U^\pm/kT}$$

onde ν_0 seria uma frequência de salto intrínseca (comumente referida na literatura como “*attempt frequency*”). A densidade de corrente de linhas de fluxo no ponto x entre os centros de aprisionamento m e $m + 1$ pode então ser escrita simplesmente como

$$J_\varphi(x, t) = 2x_0 [B(x_m, t) P_{m \rightarrow m+1} - B(x_{m+1}, t) P_{m+1 \rightarrow m}]$$

e, fazendo uma aproximação em primeira ordem para $B(x_m)$ e $B(x_{m+1})$, temos

$$J_\varphi(x, t) = -2x_0\nu_0 e^{-U/kT} \left[B \sinh \left(aB \frac{\partial B}{\partial x} \right) + x_0 \frac{\partial B}{\partial x} \cosh \left(aB \frac{\partial B}{\partial x} \right) \right] \quad (2.11)$$

onde $a = 2x_0V/4\pi kT$. Obrigando que a movimentação das linhas de fluxo obedeça a equação

da continuidade, obtemos de (2.11) a equação de arrastamento de fluxo contínuo:

$$\frac{\partial B}{\partial t} = 2x_0\nu_0 e^{-U/kT} \frac{\partial}{\partial x} \left[B \sinh \left(aB \frac{\partial B}{\partial x} \right) + x_0 \frac{\partial B}{\partial x} \cosh \left(aB \frac{\partial B}{\partial x} \right) \right]$$

Esta equação não foi resolvida analiticamente até hoje. No entanto, Beasley et al.[6] obtiveram uma solução explícita para o limite $U/kT \gg 1$ e considerando todas as derivadas espaciais como constantes exceto aquelas dentro das exponenciais. O resultado obtido desta forma para a dependência temporal da magnetização total na amostra ($M = (B - H_a)/4\pi$, onde H_a é o campo externo) seria

$$M(t) = M(0) \left[1 - \frac{kT}{U} \ln(1 + t/\tau_0) \right] \quad (2.12)$$

onde τ_0 seria um tempo característico de relaxação, cujo valor seria $\tau_0 = 8\pi kT/\nu_0 V B^2$. A equação (2.12) é a bem conhecida lei de Anderson-Kim para o decaimento da magnetização. Mas se a forma da expressão (2.12) é muito utilizada por descrever bem quase todo o processo de relaxação (especialmente nos supercondutores clássicos), o mesmo não se aplica à interpretação dada a τ_0 . De fato, não há um consenso sobre esta expressão de τ_0 , havendo trabalhos distintos que chegam a resultados discrepantes (ao menos aparentemente). Gurevich [16], por exemplo, através de um cálculo auto-consistente argumenta que τ_0 depende não apenas do modelo adotado (flux creep, TAFF, etc.) mas também da geometria da amostra e do *critério de corrente crítica* adotado. τ_0 não seria então uma característica intrínseca da amostra, mas dependeria de uma escolha arbitrária. Já Blatter et al. [7], seguindo a mesma linha de análise desenvolvida por Beasley obtém para o caso de uma placa semi-infinita de espessura d o resultado $\tau_0 = \pi T d^2 / 2 |\partial U / \partial j| c v_0 H$, onde v_0 é a velocidade dos vórtices. Observe que neste resultado também aparece uma dependência de τ_0 com a geometria da amostra. Apesar da divergência quanto ao valor exato deste tempo característico, parece haver um certo consenso atualmente quanto ao fato do seu valor estar na faixa de 10^{-6} a 1s, enquanto antes era considerado ser da ordem de 10^{-10} s.

2.3.1 Escalas de tempo em relaxação magnética

A determinação experimental do valor do parâmetro τ_0 apresenta uma certa dificuldade pois para a janela temporal normalmente utilizada nos experimentos ($t \gg \tau_0$), a forma assintótica da

equação (2.12) não nos permite separar $M(0)$, U , e τ_0 . Isto nos obriga a estudar o estágio inicial da relaxação magnética. Mas para obtermos uma análise confiável para tempos pequenos, é necessário definir rigorosamente a origem temporal do processo de arrastamento de fluxo. Esta questão foi discutida por Sun et al[33] para o caso particular de uma amostra cilíndrica de raio a , utilizando o modelo de estado crítico de Bean e o modelo de arrastamento de fluxo de Anderson-Kim.

Sun e colaboradores chamam a atenção para o fato de que gasta-se um tempo não desprezível para se elevar o campo magnético de zero até o valor em que a medida de relaxação será feita. Durante este processo teremos campo penetrando na amostra, gerando um perfil de campo em seu interior. Uma vez que tenhamos um gradiente de campo, devemos ter o início da relaxação magnética *mesmo antes de atingirmos o campo de medida*. Se nós imaginarmos que a aplicação do campo externo é feita em pequenos saltos ΔH a intervalos de tempo constantes Δt , podemos pensar que para um dado tempo inicial t_0 seja induzido um perfil de campo linear onde $J = J_c$ na região onde houve penetração de campo e que este perfil então relaxará, extendendo-se mais para o interior da amostra, até o instante $t_0 + \Delta t$ quando teremos um novo salto no campo externo que restaurará a inclinação original e assim por diante. No entanto, para uma amostra suficientemente espessa, a partir de um dado campo H' dado por [33]

$$H' = J_{c0} \frac{\partial H / \partial t}{\partial J / \partial t}$$

o salto dado pelo campo externo não é mais suficiente para restaurar a densidade de corrente crítica em toda a região em que temos penetração de campo; a partir deste momento temos um encontro do novo perfil com o perfil induzido anteriormente e já relaxado e obtemos assim um perfil de campo total não-linear (ver figura 2-5).

O perfil de campo induzido num tempo t' atinge no instante $t > t'$ uma distância do centro da amostra

$$r(t, t') = \left(a + \frac{\partial H / t'}{\partial J(t, t') / \partial t'} \right) \quad (2.13)$$

Assumindo a relação de Anderson-Kim para a densidade de corrente

$$J(t, t') = J_{c0} \left[1 - \frac{kT}{U} \ln \left(\frac{t - t'}{t_0} + 1 \right) \right]$$

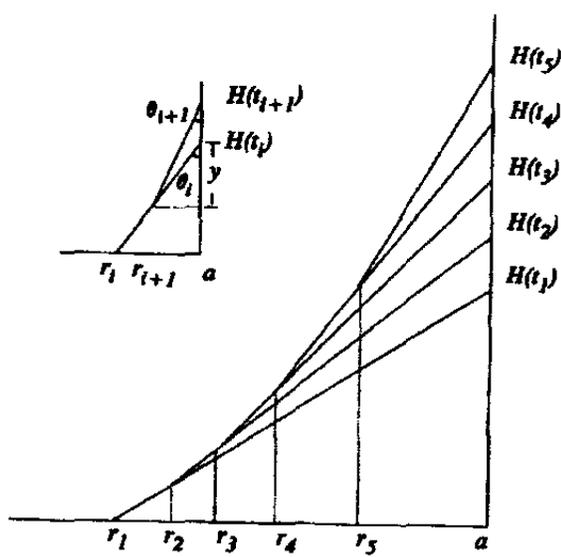


Figura 2-5: Distribuição de $h(r, t_5)$ induzida por um campo externo H aplicado em saltos de mesma amplitude ΔH em intervalos de tempo regulares $\Delta t = t_{i+1} - t_i$. Os raios r_i indicam a posição onde o perfil de campo induzido em $t = t_i$ encontra o perfil (já relaxado) induzido no instante anterior t_{i-1} . Destaque: construção usada para o cálculo de r_i (extraído de [33]).

$$\frac{\partial J(t, t')}{\partial t'} = \frac{-C}{t - t' + t_0} + \alpha K$$

onde $C = J_{c0}kT/U$, $K = \partial H/\partial t'$ e $\alpha = \partial J/\partial H$. Podemos determinar a partir da equação (2.13) qual o tempo t^* para o qual $r(t, t^*) = 0$ (centro da amostra):

$$t^* = t - \frac{aC/K}{1 + \alpha\alpha} + t_0 \quad (2.14)$$

Qual a importância de t^* na nossa discussão? Definido desta forma, ele seria o último instante tal que o perfil de campo induzido neste tempo atingiu o centro da amostra no instante de medida t . Vemos assim que t^* age como a verdadeira origem temporal da relaxação, já que para determinar o momento magnético da amostra no tempo t nós só precisamos considerar os perfis de campo induzidos em $t' \geq t^*$. Uma característica importante a se ressaltar da expressão de t^* é sua dependência com o tempo de medida t , o que neste contexto é bastante razoável.

Observamos então que há um pequeno intervalo de tempo Δt entre t^* e t_H (tempo no qual

atinge-se o valor final do campo externo), que não é normalmente considerado ao estudarmos a relaxação magnética³.

$$\Delta t = t_H - t^* = \frac{aC/K}{1 + a\alpha} - (t - t_H) - t_0 \quad (2.15)$$

Da expressão 2.15, vemos que $\Delta t = 0$ para $t - t_H \approx aC/K(1 + a\alpha)$, considerando t_0 desprezível frente o primeiro termo da direita. Assim, se desconsiderarmos o intervalo de t_H até $t = \Delta t$, teremos t_H agindo como a verdadeira origem da relaxação. Devemos então ter ao menos uma estimativa do valor de t^* para sabermos a partir de que instante podemos ter confiança nos nossos resultados. Esta estimativa está apresentada na seção 3.2.2.

2.4 Influência da Barreira Superficial

Toda a teoria de relaxação magnética revisada até agora levou em conta basicamente efeitos volumétricos, sem dar maior atenção à superfície. Se considerarmos que a influência da barreira superficial não trará um desvio do decaimento logarítmico, podemos embutir a contribuição da superfície na energia de ativação efetiva. No entanto, o efeito da barreira superficial é algo essencialmente diferente, como veremos a seguir.

A existência de uma barreira de energia associada a superfície da amostra, foi estudada inicialmente por Bean e Livingston[5]. Eles consideram a interação de um vórtice isolado com o campo local próximo da superfície e mostram que a origem da barreira superficial deve-se à competição entre a pressão magnética que empurra o fluxóide para o interior da amostra e a atração que o fluxóide sente pela sua imagem refletida na superfície (a existência desta “imagem” é uma forma de expressar as condições de contorno na superfície, a saber, $\vec{h}_0 = \vec{H}$ e $(\nabla \times \vec{h})_{\perp} = 0$). O procedimento para obter uma expressão para a força de interação entre o vórtice e a superfície é exatamente equivalente ao desenvolvido na seção 2.1.2, utilizando a equação (2.4) e lembrando que agora o campo local seria a soma do campo externo $\vec{h}_1 = \vec{H} \exp(-x/\lambda)$ (considerando uma superfície infinita coincidindo com o plano yz) com o campo do fluxóide e de sua imagem. Fazendo este cálculo obtemos diretamente que a energia

³ Δt seria então uma medida do erro que cometemos ao considerarmos a origem da relaxação como o instante final da aplicação do campo magnético.

livre para um linha de fluxo próxima da superfície do material seria

$$\Delta F = \frac{\varphi_0}{4\pi} \left[H \exp\left(-\frac{x_l}{\lambda}\right) - \frac{1}{2} \frac{\varphi_0}{2\pi\lambda^2} K_0\left(\frac{2x_l}{\lambda}\right) - (H - H_{c1}) \right]$$

onde x_l é a distância entre o vórtice e a superfície. O primeiro termo da direita indica a pressão magnética empurrando o vórtice para o interior da amostra, o segundo é um termo atrativo que origina uma força com exatamente a mesma forma da interação entre fluxóides (eis a atração pela sua imagem) e o último termo é simplesmente a energia da linha de fluxo no interior da amostra. Analisando a variação do valor da energia livre do vórtice com o campo aplicado, vemos que a entrada de fluxo na amostra só se torna energeticamente favorável para valores de campo magnético maiores que um dado campo de primeira penetração $H_p = \varphi_0/4\pi\lambda\xi > H_{c1}$. Vale ressaltar que este cálculo é feito considerando um único vórtice dentro do material.

Uma análise mais detalhada do comportamento da barreira superficial, considerando também a interação entre os vórtices, foi desenvolvida por Clem [14] e Ternovskii e Shekata [34]. Utilizando o modelo de Clem, onde o aprisionamento volumétrico de vórtices é desprezado e as propriedades irreversíveis do material são creditadas unicamente à superfície, Burlachkov [12] discutiu o comportamento da barreira superficial e da magnetização tanto para a entrada quanto para a saída de campo. A discussão que segue é baseada neste trabalho de Burlachkov.

Quando consideramos a situação em que a distância d entre os vórtices é menor que a profundidade λ e desconsideramos o pinning volumétrico nós obtemos uma condição de equilíbrio de forças (mas não necessariamente em equilíbrio termodinâmico) quando o campo local na região ocupada pelos vórtices é constante. Isto pode ser obtido assumindo que a rede de vórtices esteja a uma distância $x_f = \lambda \cosh^{-1}(H/B)$ da superfície da amostra. Neste caso o campo local pode ser escrito como

$$h(x) = B \cosh\left(\frac{x_f - x}{\lambda}\right) \quad 0 < x < x_f \quad (2.16)$$

$$h(x) = B \quad x > x_f \quad (2.17)$$

Uma vez que o campo na região ocupada pelos fluxóides é constante, então estamos na condição de equilíbrio de forças. Para que ocorra a penetração de um novo vórtice é necessário que a pressão magnética $(\varphi_0/4\pi) dh/dx$, onde h é dado por (2.16) supere a atração do vórtice

pela própria imagem dada por $(\varphi_0^2/8\pi^2\lambda^3) K_1(2x/\lambda)$. A partir destes resultados podemos determinar o valor do campo para o qual ocorre a primeira penetração de campo (e então $B = 0$) $H_p \approx \varphi_0/4\pi\lambda\xi$ e também a dependência da magnetização “reduzida” ($m = -4\pi M$) com o campo

$$m_{en} \approx \frac{H_p^2}{2H} \quad (2.18)$$

$$m_s = 0 \quad (2.19)$$

para o processo de entrada (m_{en}) e saída (m_s) de linhas de fluxo. O resultado (2.19) foi obtido considerando que só haverá saída de fluxo quando $x_f = 0$, o que só ocorre para $H = B$ e, conseqüentemente, $m_s = 0$.

Consideremos agora o caso em que o campo externo é elevado rapidamente de zero até um certo valor H e mantido constante. A magnetização da amostra atinge então o valor $m_{en}(H)$ e com o passar do tempo relaxa até atingir seu valor de equilíbrio termodinâmico m_{eq} . Isto significa que neste ínterim temos nucleação de novos fluxóides na superfície, que saltam a barreira superficial e penetram na amostra. O perfil de energia para a nucleação destes vórtices em $x < x_f$ pode ser escrito como

$$V_{en}(x) \approx \frac{\varphi_0}{4\pi} \left[\frac{B}{2} \left(\frac{x_f - x}{\lambda} \right)^2 + m_{eq} - m \right]$$

onde foi desprezada a energia associada a atração do vórtice pela própria imagem por ser esta muito menor que os demais termos [12]. Para $x > x_f$ temos $V_{en} \propto m_{eq} - m$ e daí vemos que a penetração de um novo vórtice se torna energeticamente desfavorável assim que $m = m_{eq}$. Este é o potencial que deve ser vencido pelo vórtice para penetrar na amostra.

A energia de um núcleo curvo de um vórtice submetido a um potencial externo $V(x)$ pode ser obtida através de cálculo variacional (já que temos de determinar a forma de equilíbrio do vórtice) como sendo

$$U = \frac{2}{\sqrt{\gamma}} \int_{x_1}^{x_2} \sqrt{V(x) \left(\frac{\varphi_0 H_{c1}}{2\pi} - V(x) \right)} dx$$

onde $V(x_1) = V(x_2)$ tal que para entrada de fluxo temos $x_1 = 0$ e $V(x_2) = 0$, enquanto para

saída de fluxo $x_2 = x_f$ e $V(x_1) = V(x_f)$. Utilizando este resultado e o fato de $m_{en} \gg m_{eq}$ obtém-se para a maior parte da região $m_{en} > m > m_{eq}$

$$U_{en} \approx \frac{\varphi_0 \lambda m_{eq}}{3\pi} \left(\frac{H_{c1} m_{eq}}{\gamma B m} \right)^{1/2}$$

Para o caso de saída de fluxo o procedimento é análogo ao esquematizado acima e o resultado final obtido é

$$U_s = \frac{\varphi_0 \lambda}{2\pi} m \left(\frac{H_{c1}}{\gamma B} \right)^{1/2}$$

Um cálculo mais detalhado da energia de ativação para nucleação de vórtices foi desenvolvido por Koshelev na referência [21].

É interessante introduzir agora uma breve discussão sobre o que obteríamos ao considerarmos o efeito da barreira superficial e o aprisionamento volumétrico juntos. Podemos pensar que a magnetização da amostra num dado tempo pode ser decomposta em uma parte devida a superfície e outra relativa ao volume. Consideraremos que o perfil de campo no interior da amostra é linear tal que $dM/dx = 4\pi J/c = cte$, de acordo com o modelo de Bean. A magnetização superficial seria determinada por um degrau do perfil de campo na superfície de valor $M_{sup} = [H - B(0)]/4\pi$, onde $B(0)$ é o valor da indução magnética volumétrica na superfície (ver figura 2-6)

Consideremos agora a penetração de um vórtice numa dada circunstância onde a barreira superficial é significativa enquanto o pinning volumétrico é pequeno. Este vórtice então penetrará para o interior da amostra muito rapidamente se compararmos com a razão de salto pela barreira superficial. O próximo fluxóide a saltar sobre a barreira superficial não será afetado pelo primeiro, que já estará longe no interior da amostra. Desta forma, temos a relaxação do perfil de campo no interior da amostra, com o conseqüente aumento de U_{vol} (energia de ativação volumétrica) enquanto M_{sup} e U_{sup} (energia de ativação superficial) permanecem constantes. Este quadro permanece inalterado até que $U_{vol} = U_{sup}$, quando à taxa de salto sobre a barreira superficial se iguala a taxa de penetração no interior da amostra. A partir daí U_{sup} e U_{vol} começam a crescer juntas. Esperamos então que $U_{vol} = U_{sup}$ em todo o processo de relaxação até que ou a relaxação superficial ou a volumétrica acabe. Podemos então ter duas situações possíveis:

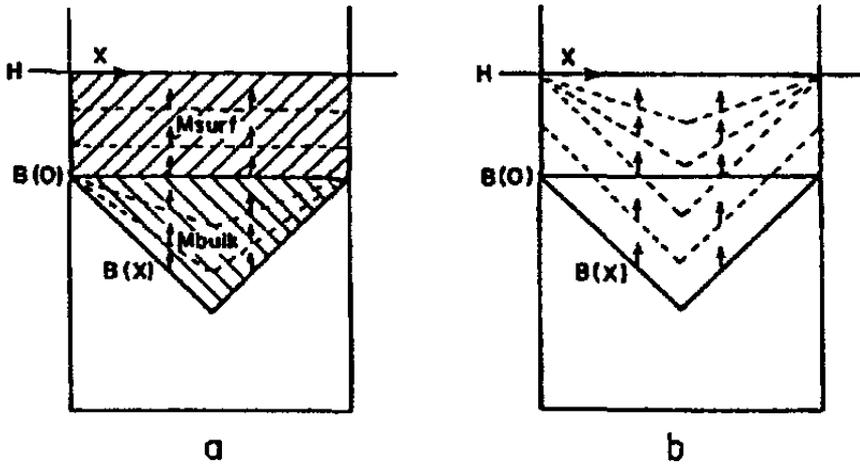


Figura 2-6: Relaxação do perfil de campo para (a) pinning volumétrico mais fraco que a barreira superficial e (b) pinning volumétrico maior que a barreira superficial (extraído de [12]).

1. A energia de ativação superficial é suficientemente maior que a volumétrica $U_{\text{sup}} (M_{\text{sup}} = M_{\text{en}}) \gg U_{\text{vol}} (J = 0)$. Neste caso a relaxação volumétrica se esgota rapidamente enquanto a magnetização superficial pouco muda do seu valor inicial. A relaxação volumétrica domina então o estágio inicial da relaxação. Uma vez completa a relaxação volumétrica, a taxa de relaxação total passa a ser dominada pela parte superficial e devemos ter nesta transição de regime uma mudança na inclinação da curva $M \times t$.
2. O aprisionamento volumétrico é maior que a barreira superficial $U_{\text{vol}} (J = J_c) \gg U_{\text{sup}} (M_{\text{en}})$. De forma semelhante ao item anterior, esperamos que agora seja a relaxação superficial que domine o estágio inicial da relaxação e, uma vez que esta esteja completa, seja a relaxação volumétrica que passe a dominar.

Em qualquer um dos dois casos acima esperamos então que, dado um tempo de relaxação suficientemente longo, nós observemos uma mudança na taxa de relaxação total criando duas etapas distintas da relaxação. A segunda etapa da relaxação será sempre mais lenta que a primeira e determinada essencialmente pela componente de maior energia de ativação.

Capítulo 3

Procedimento Experimental

Nosso principal objetivo ao iniciarmos este trabalho era identificar experimentalmente o efeito da barreira superficial no processo da relaxação magnética. Em linhas gerais, o que fizemos foi proceder a um estudo sistemático do comportamento magnético de um monocristal de nióbio para diferentes estados da superfície da amostra. Como a barreira superficial depende fortemente da qualidade da superfície (isto é, uma superfície ideal lisa e plana apresentaria uma barreira superficial máxima), esperamos que o efeito da barreira de Bean-Livingston seja então mais realçado nas medidas feitas com a superfície da amostra lisa do que nas medidas para a amostra depois de lixada. A comparação destes conjuntos de dados devem nos dar pistas sobre o comportamento da barreira superficial em si. Para realizarmos nossas medidas utilizamos um magnetômetro comercial SQUID produzido pela Quantum Design, cuja principal característica é sua grande sensibilidade (da ordem de $10^{-7} emu$).

Neste capítulo apresentaremos o equipamento utilizado e os cuidados indispensáveis na sua operação que nos permitem obter dados confiáveis e reproduzíveis. Discutiremos também com algum detalhe as diferentes histórias termo-magnéticas das nossas medidas de magnetização, ponto este fundamental por estarmos trabalhando com uma amostra que apresenta um comportamento fortemente irreversível. Finalmente, caracterizaremos a amostra que utilizamos nesta etapa do trabalho, focando principalmente o método utilizado para degradar de uma forma razoavelmente controlada a superfície da amostra.

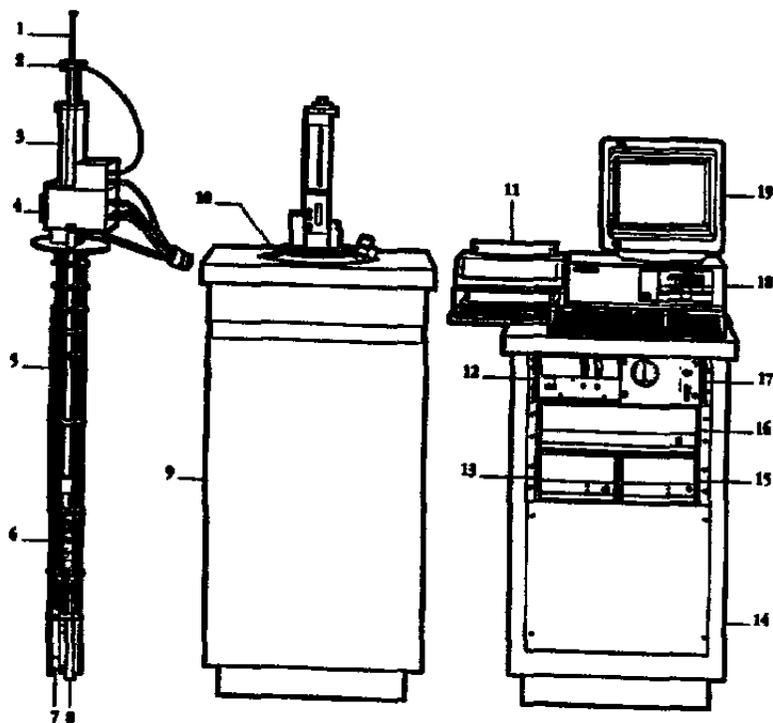


Figura 3-1: Diagrama esquemático do magnetômetro SQUID contendo os seus principais componentes (extraído da ref. [29]): 1-Suporte de amostra; 2-Mecanismo para girar a amostra (não disponível); 3-Mecanismo para o transporte da amostra; 4-Visor; 5-Sensor de nível de hélio; 6-Magneto supercondutor; 7-Impedância de fluxo (para controle de temperatura); 8-Cápsula do sensor SQUID; 9- Gabinete do Dewar; 10-Dewar; 11-Impressora; 12-Fonte do magneto; 13-Controlador de temperatura; 14-Gabinete; 15-Unidade de distribuição de potência; 16-Controlador geral; 17-Unidade de controle do fluxo de gás; 18-Computador; 19-Monitor.

3.1 Equipamento

O equipamento utilizado para a obtenção das medidas de magnetização apresentadas neste trabalho foi um magnetômetro SQUID modelo MPMS-5, produzido pela Quantum Design Inc (ver figura 3-1). Ele opera num intervalo de temperatura entre 1,9 e 400 K e seu magneto supercondutor é capaz de produzir campos de -55 a 55 kOe [29]. Todo o controle do equipamento, assim como a aquisição de dados, é feito via computador através de um programa próprio. O sistema de detecção do magnetômetro consiste em um conjunto de bobinas coletoras enroladas em uma configuração de segunda derivada de forma a minimizar a influência de campos magnéticos externos. A amostra é posicionada no centro destas bobinas e a sua movimentação produz uma

variação de fluxo magnético que é sentido pelas bobinas, gerando uma voltagem proporcional ao momento magnético da amostra. O processo de medida em si consiste em posicionar a amostra abaixo das bobinas coletoras e então movê-la em pequenos passos até o topo das bobinas. A cada passo destes mede-se a voltagem de saída. Como esta medida é muito rápida (da ordem de 5 ms), pode-se tomar a média de várias leituras da voltagem em cada posição da amostra, aumentando assim a resolução da medida. Seguindo a sugestão do fabricante, adotamos 32 pontos por varredura e 20 leituras por ponto. O comprimento de varredura adotado foi de 3,0 cm para evitar problemas com a inhomogeneidade do campo aplicado, como discutiremos em mais detalhes mais adiante.

Uma vez medida a curva da voltagem *vs* posição da amostra, pode-se obter o momento magnético da amostra comparando este resultado com uma curva teórica do sinal esperado para um dipolo, o valor do momento magnético sendo então aquele que fornece o melhor ajuste. Este método chama-se *regressão interativa* e foi adotado por minimizar o ruído da medida. Outros métodos para obtenção do momento magnético são possíveis, mas apresentam resultados inferiores, no nosso caso, que os fornecidos pela regressão interativa. Para melhorarmos ainda mais a resolução das nossas medidas, assim como para obter uma estimativa do seu desvio padrão, nós fazemos a média entre duas varreduras em cada ponto. O desvio padrão das médias feitas desta forma são em geral 2 ou 3 ordens de grandeza menores que os valores do momento magnético medido. O tempo total para a medida de cada ponto das nossas curvas de magnetização, utilizando este procedimento, é em torno de 30 s.

3.1.1 Limitações do equipamento

Cuidados relativos ao campo magnético aplicado

Um sério problema do processo de medida do magnetômetro SQUID é o fato da amostra ser movimentada durante a medida. Desta forma, a amostra é exposta a inhomogeneidade do campo magnético aplicado, o que em geral é grave pelo forte comportamento histerético normalmente apresentado pelos supercondutores do tipo II. A solução para este problema seria fazer varreduras tão curtas quanto possível (uma varredura de 2,0 cm leva a uma variação total de 0,005% do campo magnético ao longo da varredura, contra 0,2% para uma varredura de 4 cm - ver figura 3-2). No entanto, varreduras mais curtas prejudica o ajuste do sinal nas regressões,

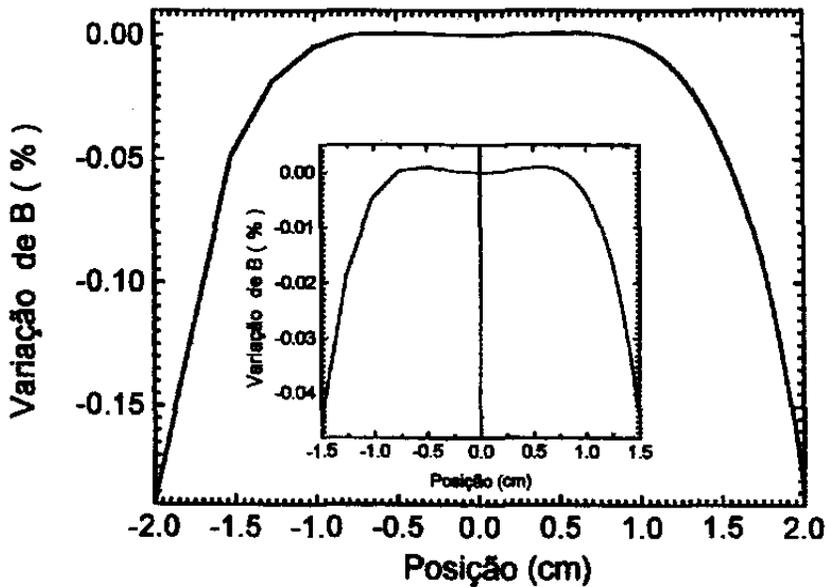


Figura 3-2: Variação do campo magnético em função da posição em relação ao magneto do magnetômetro SQUID, para uma varredura de 4 cm. No detalhe mostra-se uma ampliação para uma varredura de 3 cm (extraído da ref. [29]).

reduzindo a precisão da medida. Verificamos que a relação ótima entre homogeneidade/precisão é obtida para uma varredura de 3 cm, escolha esta utilizada em todas as nossas medidas.

Outro ponto a ser considerado é o fato do magneto do SQUID ser enrolado com fio supercondutor do tipo II e este material tende a manter fluxo magnético aprisionado em seu interior. Como resultado, este magneto apresenta um campo magnético remanente quando descarregado, o que é um sério problema quando queremos trabalhar a baixos campos ($H < 50 \text{ Oe}$), principalmente. Para minimizar este campo remanente, sempre descarregamos o magneto no modo oscilante enquanto a amostra está no estado normal, o que garante um campo remanente da ordem de 2 a 6 G (contra um campo remanente maior que 50 G para a descarga direta do magneto). Este campo magnético remanente apresenta ainda a complicação extra de não ser uniforme [8] ver figura 3-3, o que pode levar a erros sistemáticos, tais como o aparecimento de momentos paramagnéticos [25]. Para evitar este problema, devemos sempre posicionar a amostra no centro do magneto quando a resfriamos até o estado supercondutor, principalmente quando este resfriamento é feito a campo “zero”.

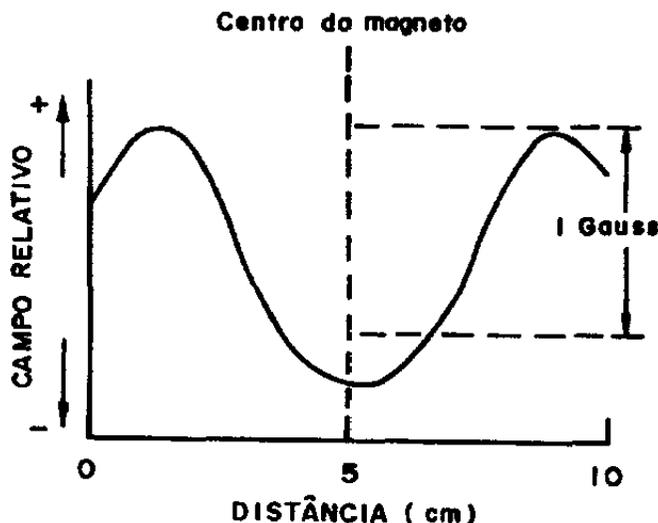


Figura 3-3: Perfil do campo remanente no magneto supercondutor de um magnetômetro SQUID modelo MPMS-5 (extraído da ref [8]).

Um último aspecto relevante quanto ao comportamento do campo aplicado está relacionado com a relaxação temporal do magneto. Como qualquer supercondutor do tipo II, o material de que é feito o enrolamento do magneto apresenta relaxação magnética, tal como foi discutido na seção 2.3. Assim, temos uma pequena variação do campo magnético aplicado na amostra com o passar do tempo. Esta variação entretanto é pequena, só sendo de alguma relevância para as medidas de magnetização *vs* tempo e ainda assim apenas nos instantes iniciais (isto é, relevante para tempos menores que 2 *min*, aproximadamente).

Controle de temperatura

O sistema de controle de temperatura do magnetômetro SQUID com os ajustes originais do fabricante para temperaturas abaixo de 10 *K* foi utilizado na maioria dos nossos experimentos apresentando uma estabilidade de temperatura excelente, com uma variação máxima da temperatura de 0,01 *K*. Problemas com a estabilidade da temperatura são conhecidos para temperaturas mais altas [20]. Entretanto, para a faixa de temperaturas onde desenvolvemos este trabalho, tal dificuldade não foi encontrada.

Por outro lado, o controle de temperatura não é satisfatório quando temos a mudança de temperatura entre dois valores próximos. O problema aqui é que o sistema antes de estabilizar a temperatura no valor desejado, leva o banho térmico para temperaturas superiores (*overshoot*) ou inferiores (*undershoot*) à temperatura desejada. A amplitude deste *overshoot* ou *undershoot* depende de quanto é a variação da temperatura, bem como do valor da temperatura alvo. Por exemplo, para temperaturas entre 4,5 e 10 K e uma variação da temperatura entre 0,1 e 1,0 K , temos um *overshoot* da ordem de 0,1 K ou até mais (ver figura 3-4). Isto significa que nós temos um pequeno ciclo térmico com a temperatura subindo e descendo antes de estabilizar no novo valor. Como as propriedades magnéticas do material supercondutor dependem da temperatura, este ciclo térmico introduz um erro nas medidas feitas utilizando este método de controle de temperatura.

Um controle mais eficiente de temperatura foi desenvolvido em nosso grupo [3] e foi adotado nas medidas de magnetização *vs* temperatura, onde o problema discutido acima é muito relevante. Entretanto, para entendermos este método, devemos antes ver como funciona o ajuste de temperatura do sistema com um pouco mais de cuidado. Na faixa de temperatura em que trabalhamos, a temperatura é determinada através do valor da condutância de um resistor de germânio colocado próximo da amostra: para cada valor da condutância observado o sistema associa a temperatura correspondente. Assim, quando damos o comando para aumentar a temperatura de 7 para 8 K , por exemplo, o programa de controle da temperatura faz o seguinte procedimento:

1. Desativa o controle de temperatura (que mantém a temperatura estável em 7 K)
2. Converte o valor de temperatura pedido (8 K) no valor da condutância que ele deve atingir (2.50 $mMho$)
3. Dá um pulso de corrente no aquecedor por alguns segundos
4. Reativa o controle de temperatura (que agora tentará estabilizar a temperatura em 8 K ou 2.50 $mMho$).
5. O sistema considerará a temperatura estabilizada quando sua variação em um minuto ficar abaixo de uma certa tolerância (usualmente 0.005 K); só então a sistema estará

pronto para realizar uma nova medida.

O problema deste procedimento é que o sistema perde o controle da temperatura por alguns instantes, justamente enquanto uma corrente alta está sendo aplicada no aquecedor. Assim, quando a mudança na temperatura é pequena, a demora em reassumir o controle da temperatura pode permitir que se ultrapassasse o valor desejado. Portanto, se por um lado este método faz com que a mudança de temperatura seja rápida, por outro lado é o responsável pelo *overshoot* indesejável.

O método que nós adotamos contorna este problema usando diretamente o valor da condutância da resistência de germânio: ao invés de mandar o sistema alterar a temperatura, nós alteramos o valor da condutância que o sistema usa para testar se a temperatura está estável ou não (no exemplo acima, mudamos a condutância para 2.50 mMho diretamente). Assim, o sistema age apenas tentando manter a temperatura constante em torno do seu novo valor, *sem aplicar o pulso de corrente ou perder o controle da temperatura*. O *overshoot* é assim drasticamente reduzido, como pode ser visto na figura 3-4, significando não apenas uma melhoria na qualidade das medidas, como também nos permite usar passos menores de temperatura, melhorando a resolução das curvas. O ponto delicado deste método é que ele só funciona se o sistema considerar que a temperatura está estável durante todo o processo. Assim, nós temos que “enganar” o sistema, colocando uma tolerância para a variação da temperatura superior ao valor da variação de temperatura que estamos realizando. Com isso é deixado a critério do usuário dizer quando a temperatura está realmente estável, já que para o sistema ela sempre estará estável. Verificamos, por exemplo, que uma espera de 60 s antes de realizar a medida é suficiente para termos a estabilização da temperatura para um passo de 0.1 K .

3.1.2 Histórias termo-magnéticas das medidas de magnetização

O comportamento histerético da nossa amostra faz com que o comportamento da magnetização seja diferente para diferentes histórias termo-magnéticas. Desta forma, uma curva $M \times T$ onde resfriamos a amostra até o estado supercondutor com campo magnético aplicado é intrinsicamente diferente da mesma medida feita resfriando a amostra a campo zero, por exemplo. Esta seção visa, portanto, apresentar mais detalhes sobre os diferentes procedimentos adotados nas nossas medidas e introduzir um vocabulário comum que facilite a discussão dos resultados.

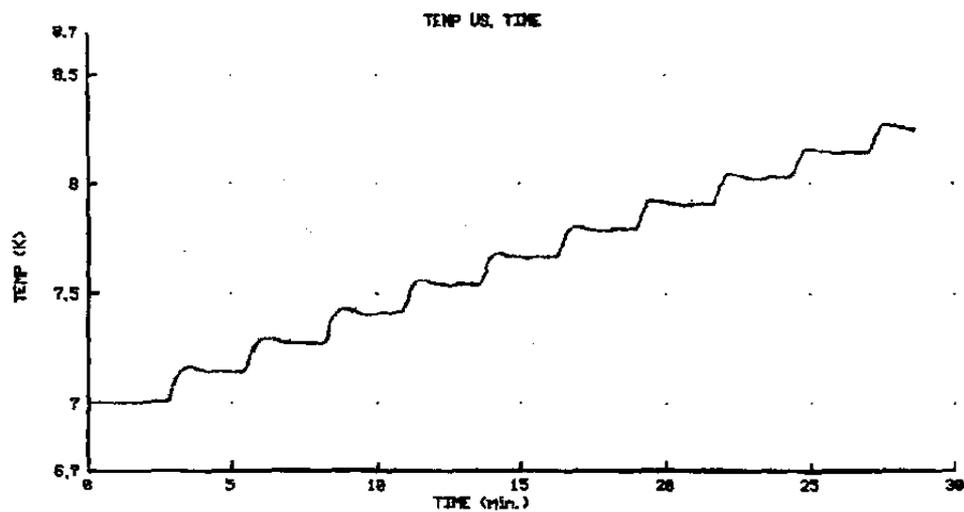
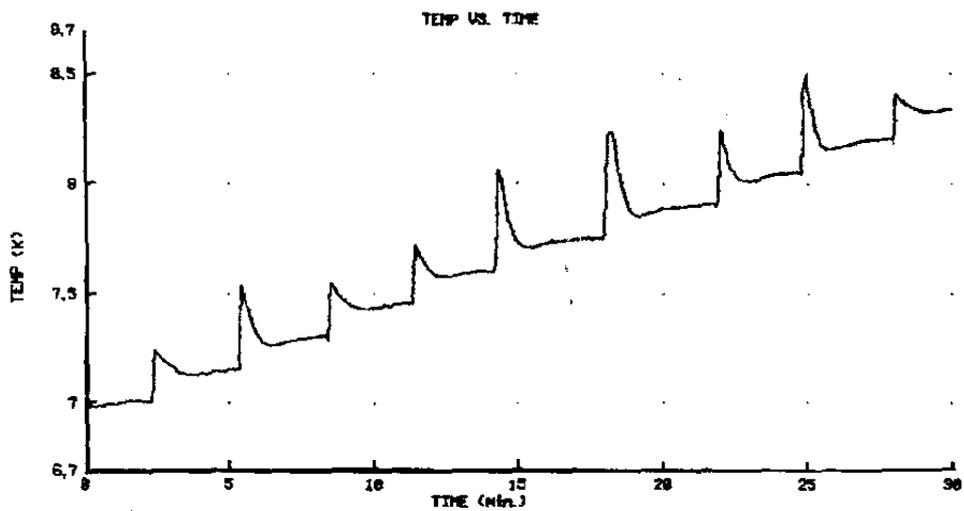


Figura 3-4: Comparação entre o método de controle de temperatura usual (a) e direto (b).

Magnetização vs Temperatura ($M \times T$)

Ao longo de todo o trabalho, realizamos medidas da magnetização vs temperatura para duas histórias termo-magnéticas diferentes:

1. ZFC (Zero Field Cooled): A amostra, inicialmente no estado normal é resfriada até a temperatura mínima da medida, a campo zero. Com a amostra então já no estado supercondutor, aplica-se o campo magnético de medida e mede-se a magnetização. A seguir a amostra é aquecida até a próxima temperatura de medida, faz-se nova medida da magnetização e assim sucessivamente.
2. FCC (Field Cooled, Cooling): Aplica-se o campo magnético de medida com a amostra ainda no estado normal. Só então começa-se a resfriar a amostra, medindo a magnetização para temperaturas decrescentes. Esta medida em geral é feita logo após uma medida ZFC para o mesmo campo aplicado. Devemos ter o cuidado, neste caso, de garantir que a amostra realmente atingiu o estado normal ao final da curva ZFC antes de podermos fazer a curva FCC.

Além destas duas histórias, na segunda parte do trabalho utilizamos ainda de uma terceira história termo-magnética, FCW (Field Cooled, Warming), onde resfriamos rapidamente a amostra até a temperatura mínima da medida e então medimos a magnetização para temperaturas crescentes.

Magnetização vs Campo Magnético ($M \times H$)

Para as curvas $M \times H$ temos também dois procedimentos básicos:

1. Ramo Ascendente ou V (Virgem): A amostra é resfriada até a temperatura de medida, a campo zero, e então medimos a magnetização enquanto aumentamos o campo aplicado.
2. Ramo Descendente ou FRD (Fluxo Retido, Descendo): A amostra é resfriada até a temperatura de medida com um campo aplicado maior que o campo crítico superior $H_{c2}(T)$, permanecendo portanto no estado normal. O campo magnético então é lentamente reduzido, medindo-se a magnetização no processo.

Aqui novamente utilizamos uma terceira história magnética em algumas medidas, *FRS* (*Fluxo Retido Subindo*), onde ao completarmos uma curva *FRD* simplesmente voltávamos a aumentar o campo magnético e medíamos a magnetização para campos crescentes.

Magnetização *vs* Tempo (Relaxações)

O processo de relaxação admite apenas duas possibilidades:

1. *ZFC*: Analogamente ao caso *ZFC* para as curvas $M \times T$, aqui a amostra é resfriada a campo zero até a temperatura de medida. A seguir aplicamos o campo magnético desejado e deixamos o sistema evoluir no tempo (medindo a magnetização a cada 1.5 *min*, durante 5 horas).
2. *FC*: Sempre feita após uma curva *ZFC*. Ao final de uma medida *ZFC*, aumentamos o campo aplicado até o dobro do valor do campo magnético de medida H_{med} . Reduz-se então o campo magnético novamente para o valor de medida. Desta forma, a variação inicial de campo magnético é igual nas curvas *ZFC* e *FC*. A magnetização é então medida a cada 1.5 *min*, durante 5 horas.

3.1.3 Caracterização da amostra

Na primeira parte deste trabalho utilizamos um monocristal de nióbio de alto grau de pureza e de dimensões $2.2 \times 1.0 \times 0.9 \text{ mm}^3$. A escolha de se trabalhar com nióbio justifica-se por ser, dentre os supercondutores clássicos, um dos que apresenta temperatura crítica mais alta; o fato de ser um monocristal muito puro também é importante para minimizar o aprisionamento volumétrico de vórtices e assim realçar mais a influência da superfície. Esta amostra foi cortada de um longo monocristal cilíndrico de nióbio produzido em nosso laboratório. Inicialmente usamos uma serra de diamante para cortar um disco com espessura de cerca de 1 *mm* e em seguida fizemos dois cortes paralelos neste disco de forma a obtermos a barra, como esquematizado na figura 3-5. Obtemos assim a amostra no estado que chamamos *como cortada*. Esta seria a situação de máxima degradação da superfície, já que o corte deixou a superfície da amostra muito machucada. No entanto, este não é um estado de superfície muito adequado para nossa

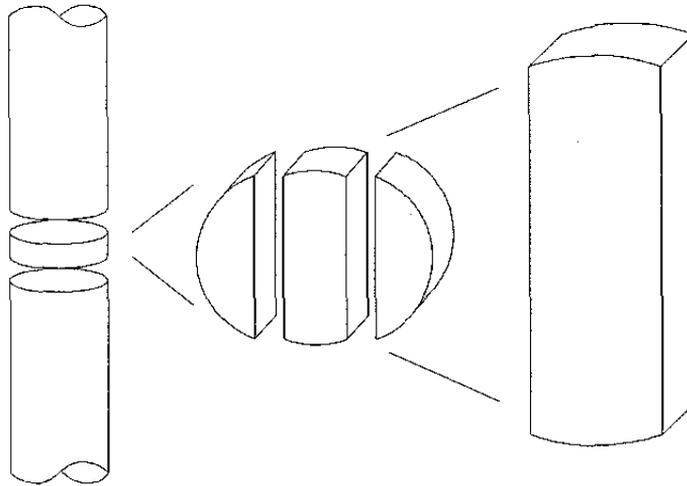


Figura 3-5: Representação esquemática apresentando o processo do corte da amostra (extraído de [3]).

análise já que o processo de cortar a amostra introduz muito defeitos e tensões na estrutura cristalina do material em uma camada razoavelmente espessa próxima a superfície.

Após uma primeira sequência de medidas submetemos a amostra a um ataque químico para eliminar esta camada superficial de material “estragado” e também para deixar a superfície do material o mais lisa possível (polimento químico). A solução utilizada no polimento é bem conhecida [28] e consiste em uma solução de ácido sulfúrico (H_2SO_4), ác. nítrico (HNO_3), ác. fluorídrico (HF) e água na proporção de 2 : 1 : 1 : 2. Para este novo estado da superfície, que chamamos de *polida*, fizemos então uma detalhada sequência de medidas no SQUID. O passo seguinte seria começar a degradação controlada da superfície da amostra.

A degradação da superfície foi feita através de um lixamento suave, onde utilizamos a lixa mais fina que tínhamos disponível (#600) de forma a produzir pequenas ranhuras com uma largura da ordem de $10 \mu m$. Um primeiro lixamento, muito delicado, foi feito de forma a produzir ranhuras no sentido longitudinal da amostra. Algumas medidas foram feitas neste estágio, mas o pequeno efeito do lixamento nos fez passar rapidamente para um lixamento um pouco mais vigoroso, onde não mais houve a preocupação de produzir ranhuras paralelas e longitudinais. Obtivemos assim o estado de superfície que chamamos de *lixada* (ver figura 3-6). Novamente uma grande série de medidas foi feita no SQUID, sendo então os estados da

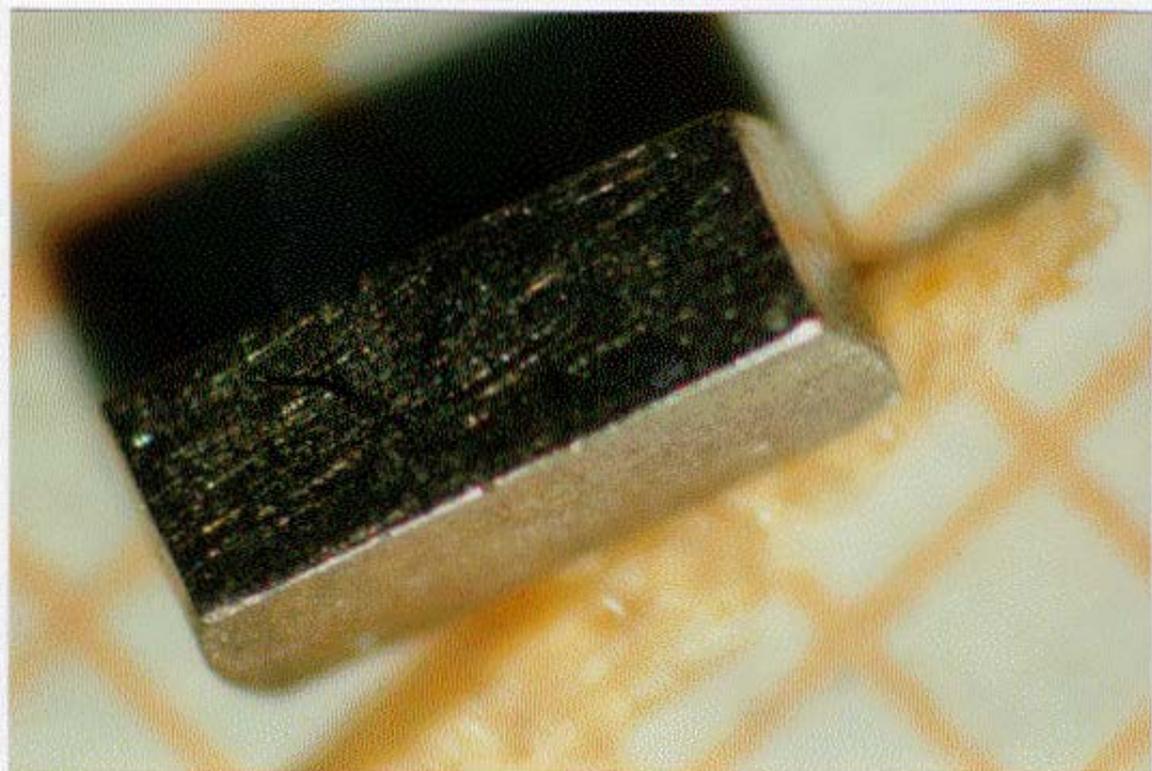


Figura 3-6: Fotografias mostrando o monocristal de nióbio com as faces lixadas (acima) e muito polidas (abaixo).

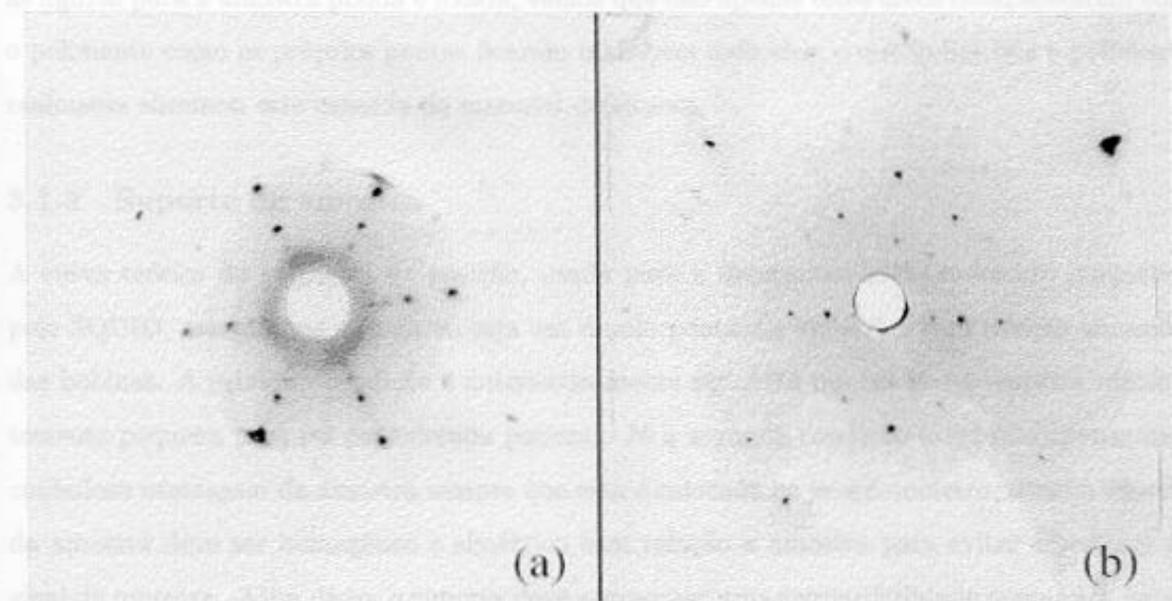


Figura 3-7: Figuras de difração de raios X, tipo Laue, para a amostra (a) lixada e (b) muito polida.

superfície *polida e lixada* os mais sistematicamente estudados. Com relação a eles é que a maior parte da análise das relaxações foi feita. Para encerrar, realizamos um último ataque químico, bastante longo, onde reduzimos a amostra à aproximadamente um terço da sua massa inicial, realizando então mais algumas poucas medidas de magnetização.

Um aspecto indesejado da supressão da barreira superficial via lixamento da superfície é que, mesmo procedendo com delicadeza, ao produzir um sulco na superfície da amostra estamos invariavelmente introduzindo tensões e defeitos na estrutura cristalina do material. A influência destes defeitos superficiais nos nossos resultados serão discutidos com maior detalhe mais adiante.

Para nos certificarmos da qualidade do monocristal estudado, procedemos a uma caracterização da amostra por raios X. Podemos observar nas figuras de difração obtidas (ver figura 3-7) que o material apresenta uma estrutura monocristalina indubitavelmente. Podemos distinguir ainda na fotografia feita com a amostra lixada a presença de pequenos arcos próximos dos pontos mais intensos. Estes arcos são causados por pequenas distorções da estrutura cristalina, produzidas pelo lixamento numa camada próxima a superfície da ordem de $2 \mu\text{m}$. Comparando

as figuras para a amostra polida e lixada, vemos que não apenas estes arcos desapareceram com o polimento como os próprios pontos ficaram mais bem definidos, o que indica que o polimento realmente eliminou esta camada de material defeituoso.

3.1.4 Suporte de amostra

A curva teórica da voltagem *vs* posição, usada para a determinação do momento magnético pelo SQUID, assume que a amostra seja um dipolo pontual e simétrico com relação ao centro das bobinas. A primeira condição é automaticamente satisfeita por ser nossa amostra suficientemente pequena para ser considerada pontual. Já a segunda condição exige não apenas uma cuidadosa centragem da amostra sempre que esta é colocada no magnetômetro, como o suporte da amostra deve ser homogêneo e simétrico com relação a amostra para evitar distorções no sinal da amostra. Além disto, o suporte deve apresentar uma susceptibilidade magnética baixa, para que o seu sinal magnético não mascare o sinal da amostra. É importante também que o suporte de amostra permita o livre fluxo de hélio pela amostra, assim como ser um bom condutor térmico, para permitir um equilíbrio térmico rápido e homogêneo na região da amostra.

O suporte de amostra utilizado nesta primeira fase do trabalho é bastante simples. Consiste simplesmente em um tubo longo ($\sim 20\text{ cm}$) de quartzo cujo diâmetro interno é um pouco maior que a largura da amostra. A amostra é então inserida neste tubo, sendo fixada aproximadamente no centro do mesmo com a ajuda de uma pequena quantia de graxa de vácuo. Em uma das pontas do tubo de quartzo foi colado um pequeno pedaço de canudo de refresco que vai envolver a ponta da vareta metálica do SQUID (ver figura 3-8). Utilizando um tubo plástico com diâmetro aproximadamente igual ao da ponta da vareta metálica prendemos então o suporte na vareta. Na outra ponta do tubo de quartzo enrolamos uma fita de PVC de forma a reduzir o diâmetro do furo do tubo, *mas sem fechá-lo completamente*, para que na eventualidade da amostra se soltar da parede do tubo ela não caia dentro da câmara do SQUID.

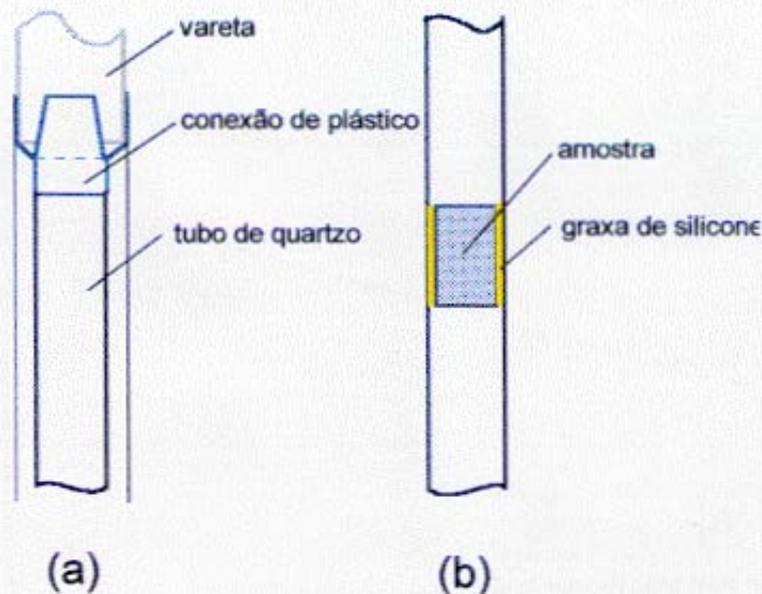


Figura 3-8: Apresentação esquemática do suporte de amostra usado nas medidas com a barra monocristalina: (a) detalhe do encaixe do suporte na vareta do SQUID; (b) amostra presa no tubo de quartzo com graxa de silicone.

3.2 Resultados Experimentais

3.2.1 Introdução

O modelo de Anderson-Kim é bastante simples, como visto na seção 2.3 e suas limitações, assim como descrições alternativas do processo de relaxação magnética, têm sido assunto de muitos trabalhos atuais. Grande parte destas questões, entretanto, são relevantes basicamente para os supercondutores de alta temperatura crítica e/ou para medidas de longa duração.

Os resultados que obtivemos em medidas de relaxação de 5 horas foram sempre bem descritos pelo modelo de Anderson-Kim, como mostrado na figura 3-9. Vemos que o maior desvio do comportamento logarítmico observado ocorre para tempos pequenos ($t \leq 5$ min), o que é compatível com as considerações feitas sobre os efeitos da relaxação do magneto (seção 3.1.1), assim como a dificuldade de tratar os instantes iniciais da relaxação (seção 2.3.1). Como uma forma de garantir que nenhum destes efeitos influencie nossos resultados, toda a discussão que se seguirá considera apenas a relaxação para tempos maiores que $t_{ref} = 10$ min. O preço a

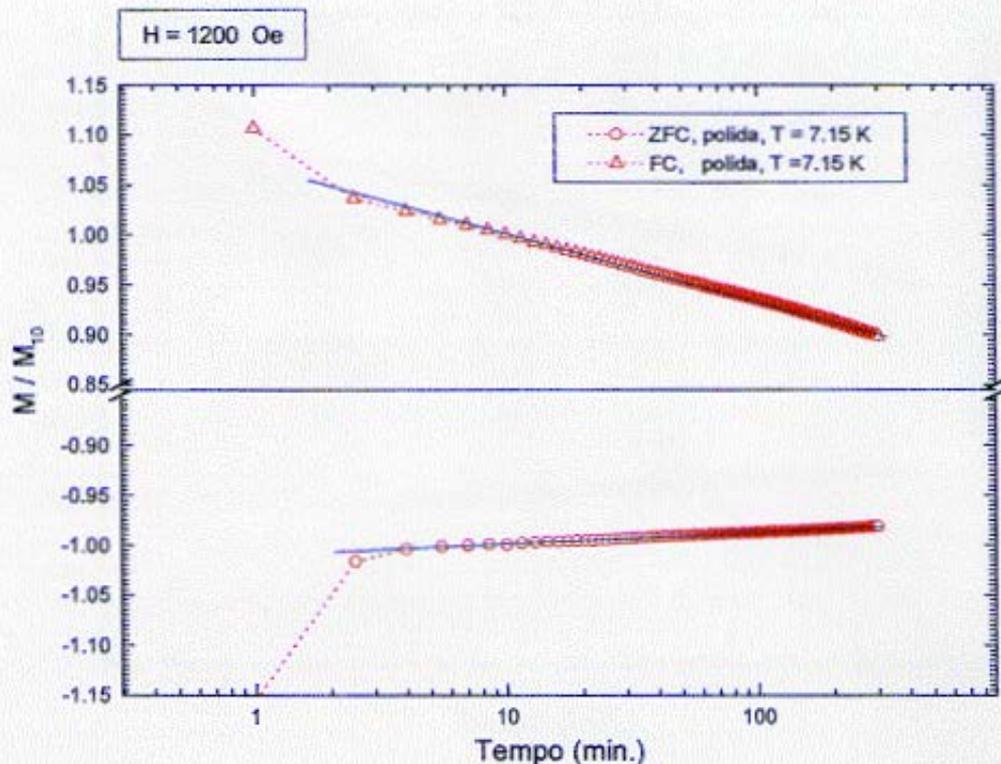


Figura 3-9: Gráfico da magnetização em função do tempo para a barra de nióbio monocristalino polida. As curvas foram normalizadas pelo valor da magnetização em $t = 10 \text{ min}$.

ser pago por este cuidado é que não temos como reivindicar nenhum efeito para estes instantes iniciais.

Outro aspecto a ser considerado é a existência de desvios da lei logarítmica para medidas de longa duração [36]. Dentro da janela de tempo em que trabalhamos, entretanto, não observamos nenhum desvio significativo. A fim de explorar esta questão com mais detalhe, fizemos uma relaxação mais longa, onde deixamos o sistema relaxar por 12 horas. Nesta medida em particular, esperamos 6 horas para garantirmos que a temperatura estava perfeitamente estável antes de aplicar o campo magnético e começarmos a medida em si. Assim esperamos evitar qualquer eventual desvio causado pelo *drift* de temperatura. O resultado deste experimento está mostrado na figura 3-10 e não apresentou diferenças significativas com relação as demais me-

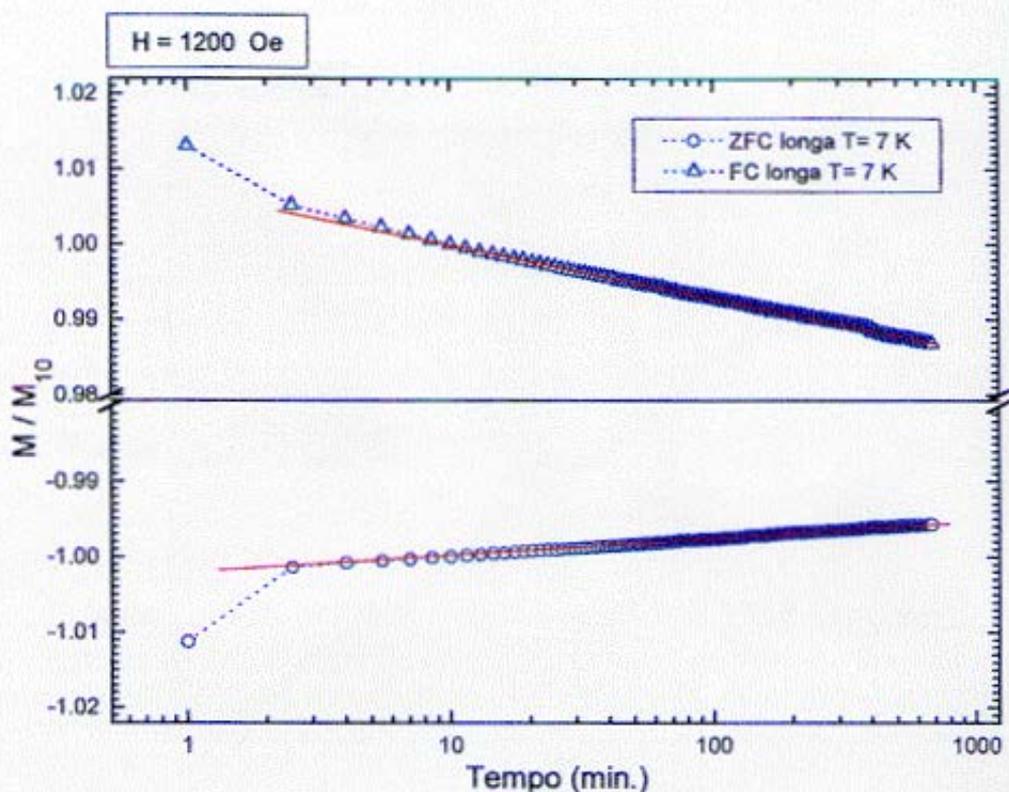


Figura 3-10: Gráfico da magnetização vs tempo para barra de nióbio monocristalino lixada.

didadas feitas. Desta forma, consideramos que não se justificaria, dentro deste projeto, trabalhar com medidas que ocupem tanto tempo de máquina, já que medidas mais rápidas apresentam resultados equivalentes.

Uma última consideração geral que podemos fazer a partir dos resultados que obtivemos em nossas medidas de magnetização é que o modelo logarítmico de Anderson-Kim descreve essencialmente o comportamento médio da magnetização em função do tempo. De fato, em uma fração significativa das nossas medidas observamos que a curva da magnetização em função do tempo apresenta pequenos saltos que parecem indicar a ocorrência de *avalanches de fluxo* na amostra, como podemos ver na figura 3-11.

Podemos ver que, após cada avalanche, o sistema volta para sua magnetização “média”, reassumindo seu comportamento logarítmico anterior. Isso seria equivalente a dizer que a relaxação magnética em supercondutores tipo II é um processo auto-organizado; não vamos,

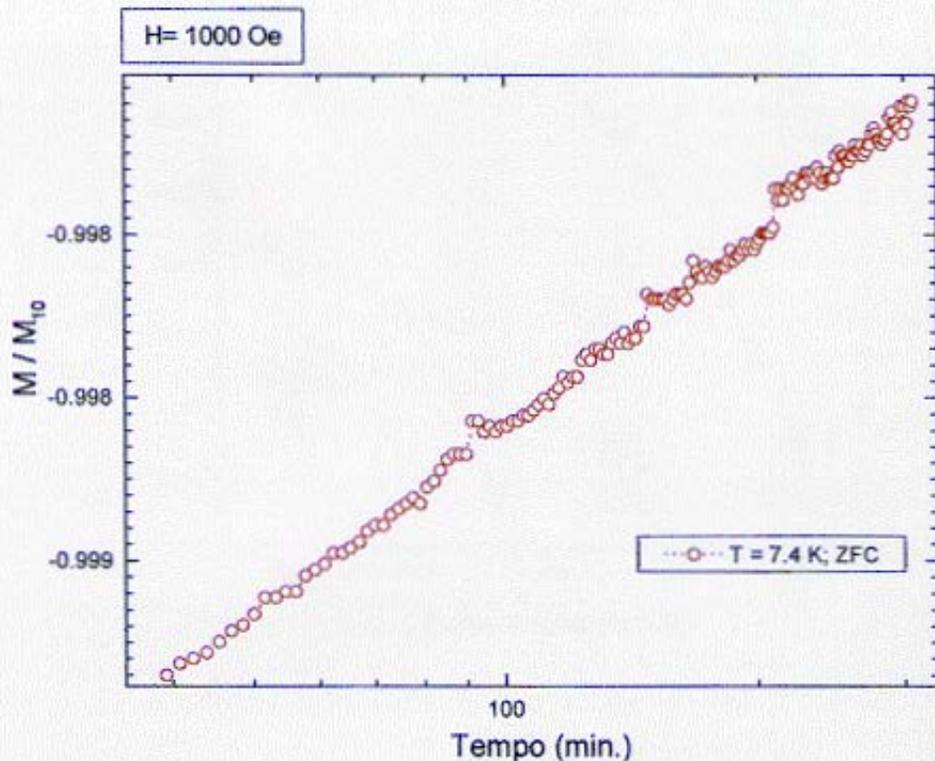


Figura 3-11: Ampliação do gráfico da magnetização vs tempo (escala logarítmica) para um campo aplicado de 1000 Oe e $T = 7.4$ K para barra monocristalina polida, ressaltando a ocorrência de avalanches de fluxo.

entretanto nos estender nesta discussão.

3.2.2 Apresentação dos resultados

Estimativa de t^*

Para que possamos estimar o intervalo de tempo a ser desconsiderado nas nossas medidas, precisamos obter os parâmetros que aparecem na expressão (2.14). A taxa de variação do campo aplicado K pode ser determinada medindo diretamente com um cronômetro o tempo que o equipamento leva para mudar o campo aplicado. Verificamos desta forma que a taxa de aplicação de campo no SQUID depende de quanto queremos variar o campo e do próprio valor

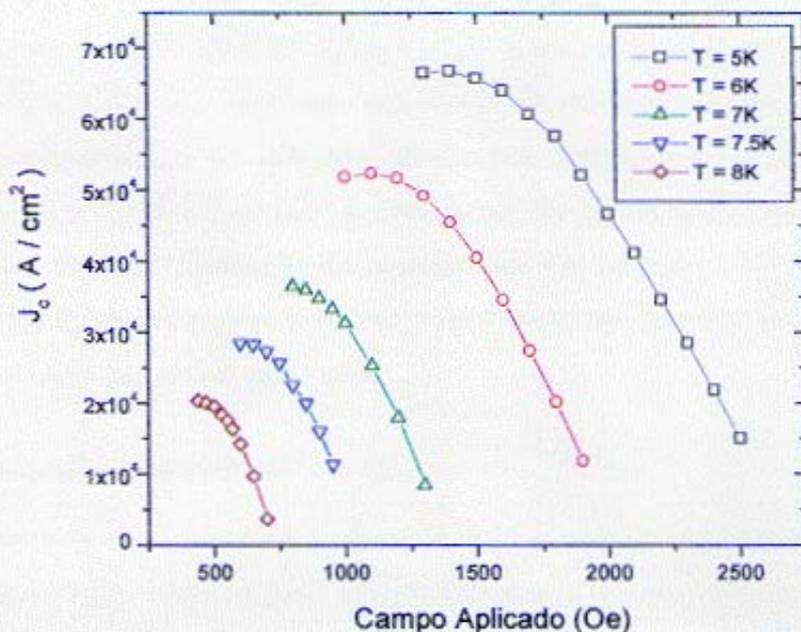


Figura 3-12: Curvas de J_c em função do campo aplicado para a barra de nióbio monocristalino lixada.

do campo aplicado. Fazendo uma média dos resultados obtidos para os intervalos de campo que usamos nas nossas medidas, obtivemos uma taxa de variação de campo de $K = 15,8 \text{ Oe/s}$. Para o cálculo de C e α , precisamos antes obter a dependência da densidade de corrente crítica J_c em função do campo aplicado H . Isto pode ser feito já que dentro do modelo de Bean de estado crítico, aplicado para um prisma de seção reta retangular, temos que [13]:

$$M_{irr} = -J_c a \frac{(3b - a)}{12b} \quad (3.1)$$

onde a e b são as dimensões das faces da barra perpendiculares ao campo aplicado e M_{irr} é a parte irreversível da magnetização. Podemos assim determinar a magnetização de equilíbrio em função do campo aplicado das medidas de $M \times H$, obtendo então o resultado mostrado na figura 3-12.

O cálculo de $\alpha = \partial J / \partial H = 75 \text{ A/Gcm}^2$ então é direto, enquanto que para determinar C ,

precisamos ainda extrapolar todas as curvas para $H = 0$ e com estes resultados para várias temperaturas, traçar uma reta que, quando extrapolada para $T = 0$ nos dê J_{C0} . Procedendo desta forma obtivemos $J_{C0} \sim 1.4 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$, o que corresponde a $C \sim 10^4 \text{ A/cm}^2$. Observe que utilizamos $kT/U \sim 0.1$, que obtivemos (em média) do cálculo da energia de ativação.

Utilizando finalmente os resultados calculados acima, obtivemos um valor para o intervalo inicial da relaxação de $t^* \sim 6 \text{ s}$. Este valor é muito menor do que a escala de tempo característica de outros desvios devidos à limitação do aparelho que são da ordem de um minuto, como apontado na seção 3.1.1. Esta questão da real origem temporal da relaxação não é relevante, portanto, na discussão dos nossos resultados.

Curvas de relaxação magnética ($M \times t$)

A relaxação magnética nos supercondutores clássicos é um processo muito lento, sendo então a variação da magnetização muito pequena quando comparada com a amplitude da magnetização em si. Para realçar a relaxação nestes sistemas é interessante normalizar a magnetização pelo seu valor em um tempo arbitrário à nossa escolha. Mais que simples conveniência para visualização, vimos que esta é uma etapa necessária para o cálculo da energia de ativação. Para qual tempo faremos esta normalização, entretanto, é algo completamente arbitrário. Optamos então por normalizar nossas medidas pelo valor da magnetização em $t_{ref} = 10 \text{ min}$, (M_{10}), de forma a evitarmos os desvios observados nos instantes iniciais, tal como discutido na seção anterior.

Procedendo desta forma à normalização das medidas de relaxação obtemos, para cada valor de campo aplicado e estado da superfície, conjuntos de curvas para diferentes temperaturas como o mostrado na figura 3-13.

Podemos então observar que a taxa de variação da magnetização é maior para as curvas *FC* do que para as curvas *ZFC*. Em outras palavras, a relaxação magnética é assimétrica com relação a entrada e saída de campo da amostra e essa assimetria aumenta juntamente com a temperatura. A explicação mais direta para esta assimetria seria a influência da barreira superficial que, como já foi discutido na seção 2.4, é fortemente assimétrica quanto a entrada e saída de campo. Como a barreira superficial praticamente independe da temperatura [12] enquanto o aprisionamento volumétrico cai exponencialmente com a temperatura, a influência da barreira superficial deve ser mais realçada a temperaturas mais altas, o que é condizente com

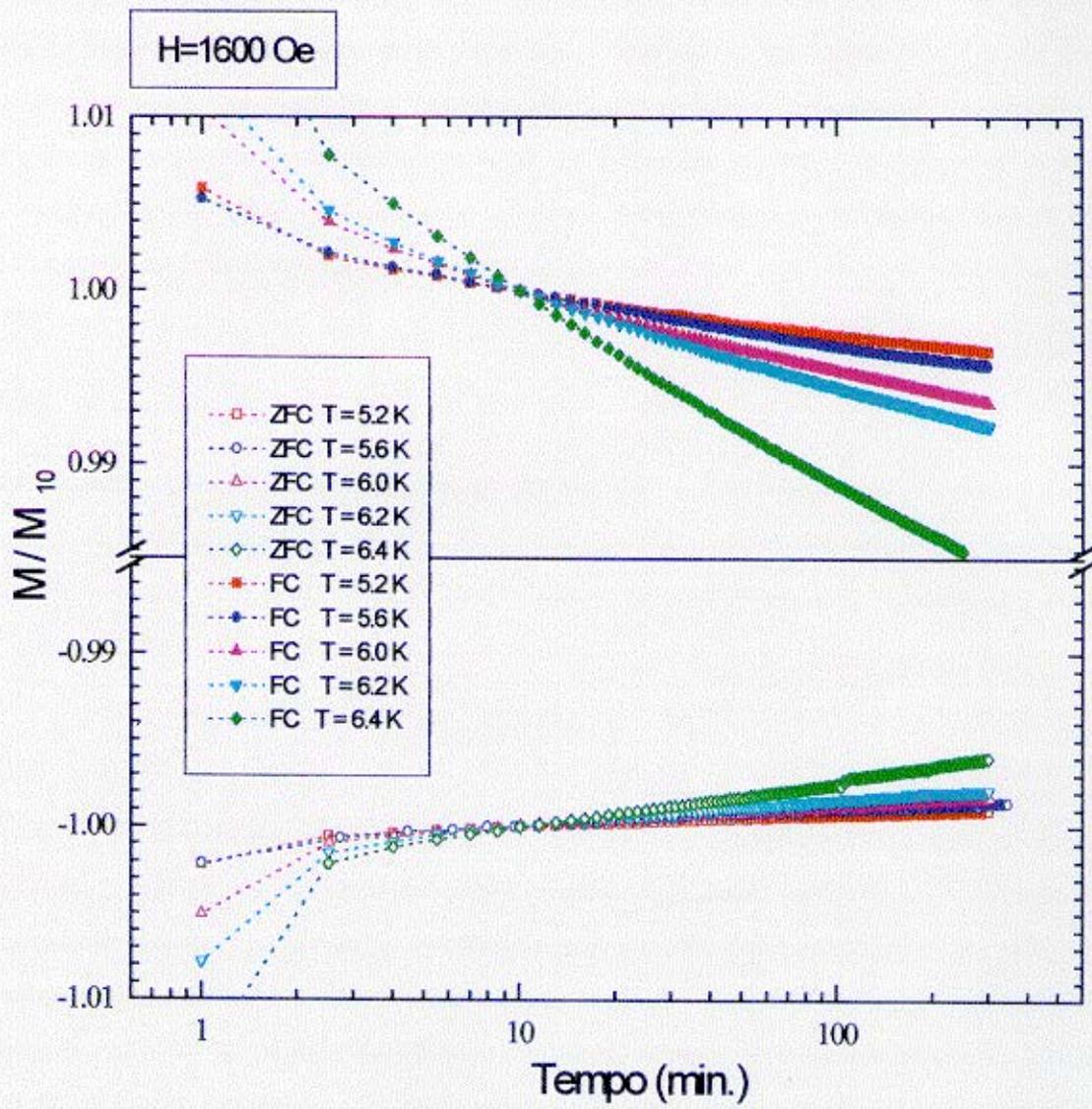


Figura 3-13: Conjunto de relaxações para várias temperaturas e campo aplicado de 1200 Oe para a barra monocristalina polida. A magnetização está normalizada pelo seu valor para $t = 10$

o aumento da assimetria observado. Esta interpretação ganha mais força quando comparamos medidas de relaxação para o mesmo campo aplicado e mesma temperatura mas para estados da superfície diferentes (superfície polida e lixada - ver figura 3-14).

Verificamos então que com o lixamento reduziu significativamente a assimetria entre entrada e saída de fluxo da amostra. Este seria o resultado esperado se consideramos que a assimetria observada é causada pela barreira superficial, já que o lixamento deve suprimi-la. Entretanto, a redução da assimetria entre entrada e saída de fluxo com o lixamento não é tão evidente para temperaturas e campos aplicados mais baixos. Para colocar esta discussão de uma forma mais consistente, devemos calcular a energia de ativação e ver como esta se comporta com o lixamento.

Cálculo da energia de ativação U

O procedimento para o cálculo da energia de ativação é bastante simples. Apartir do resultado 2.12 obtido usando o modelo de Anderson-Kim, vemos que podemos relacionar a energia de ativação com a derivada da magnetização (normalizada) pelo logaritmo do tempo, $S = 1/M_{ref} \partial M / \partial \ln(t)$, da forma

$$U = kT \left(\ln \left(\frac{t_{ref}}{\tau_0} \right) - \frac{1}{S} \right) \quad (3.2)$$

onde M_{ref} é o valor da magnetização para o tempo de normalização arbitrariamente escolhido como sendo $t_{ref} = 10$ min. O resultado obtido está exemplificado na figura 3-15. Podemos ver que os valores obtidos para a energia de ativação para o monocristal de nióbio são da ordem de 1 eV, valores estes condizentes com os resultados encontrados na literatura para supercondutores clássicos [6]. O valor da energia de ativação efetiva do sistema está diretamente associada com a taxa de relaxação magnética. Obtendo valores diferentes para a energia de ativação para os regimes de entrada e de saída de campo, caracterizamos então a assimetria entre estes dois processos.

Podemos observar que para campos mais altos temos uma aproximação das curvas *ZFC* e *FC*, o que reflete uma redução da assimetria do sistema, ainda que permaneça ainda uma razoável assimetria. Além disso, esta redução da assimetria praticamente desaparece quando

H = 1200 Oe

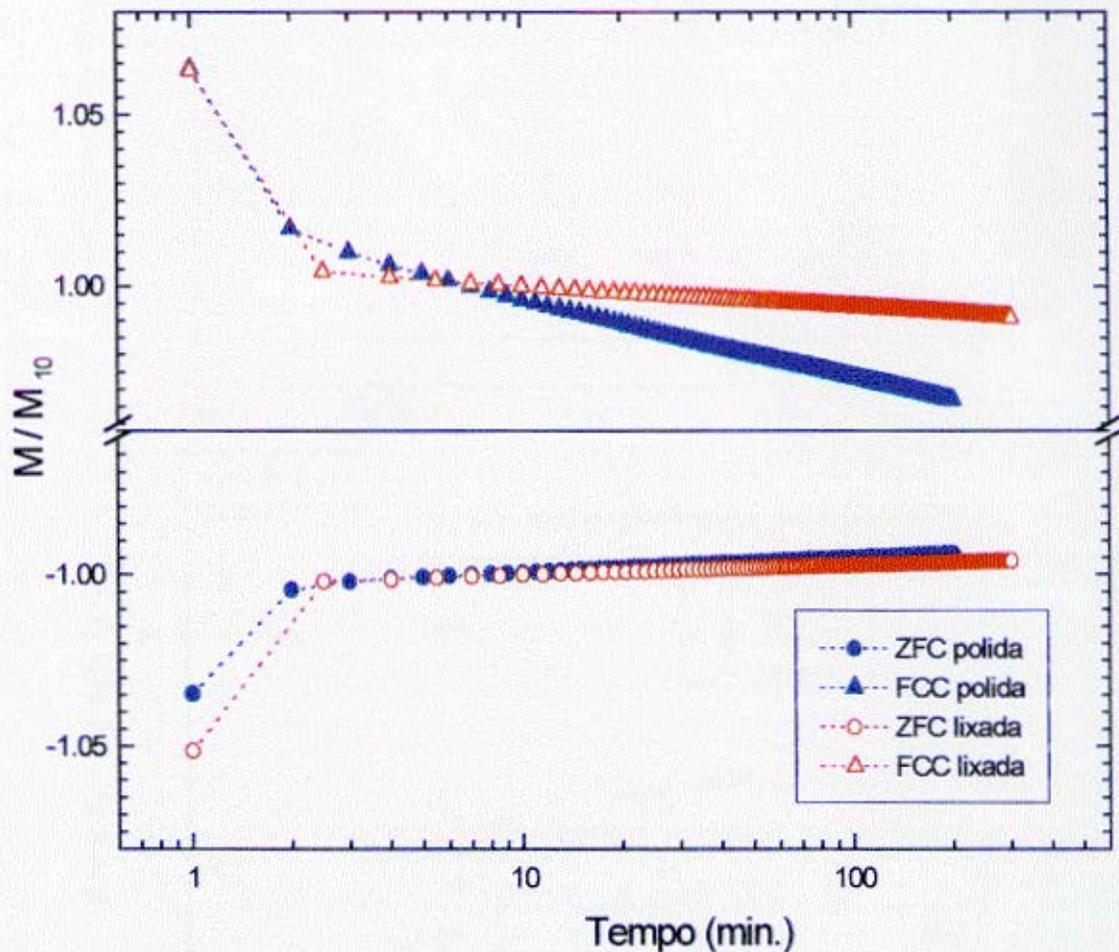


Figura 3-14: Gráfico das curvas de relaxação para a barra de nióbio monocristalino polido e lixada, medidas a 7.15K, ressaltando a redução da assimetria entre entrada (ZFC) e saída (FC) de campo da amostra com o lixamento.-

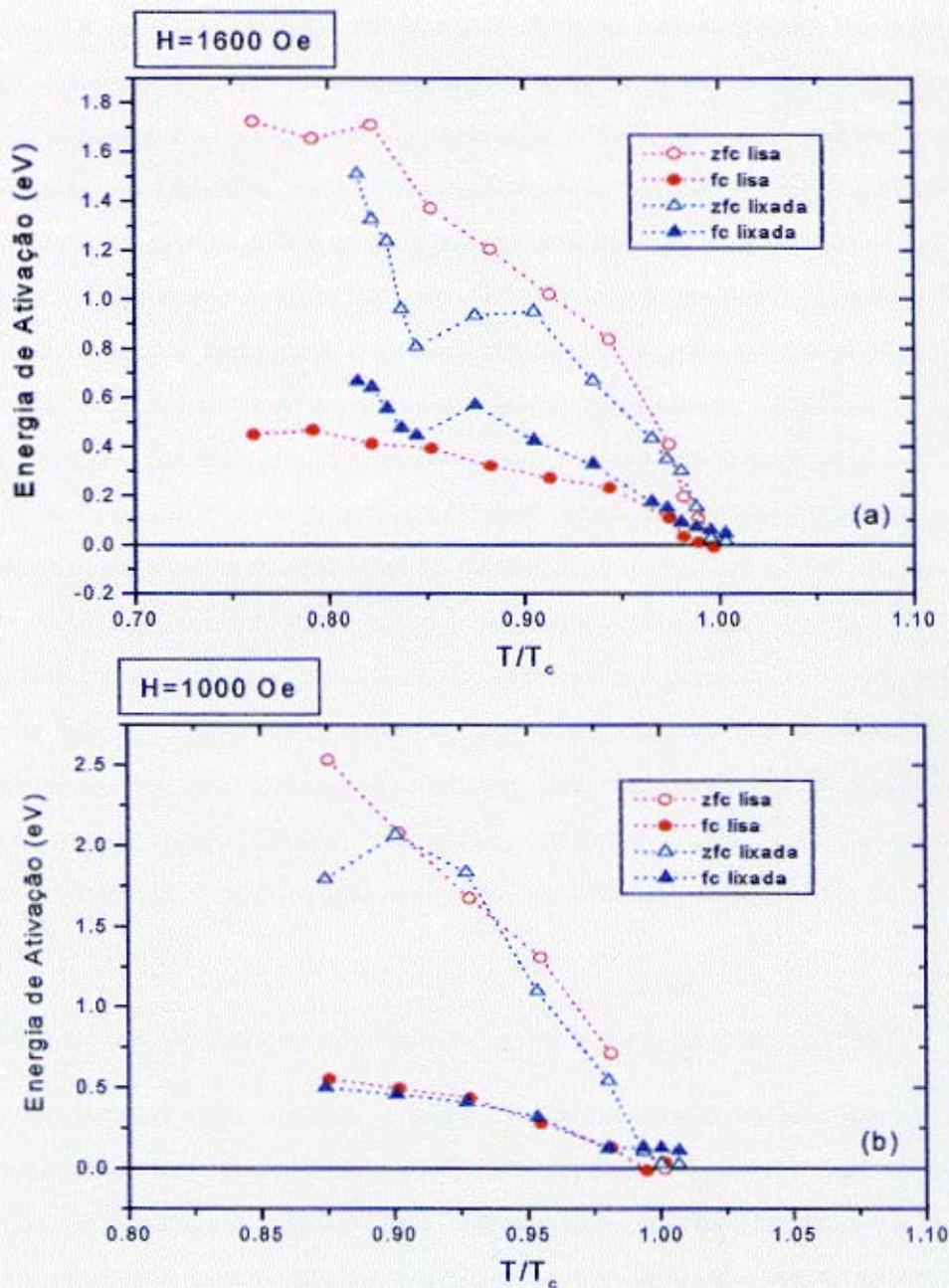


Figura 3-15: Gráficos da energia de ativação em função da temperatura reduzida para 1600 Oe (a) e 1000 Oe (b). Observe o fechamento das curvas ZFC e FC para o campo aplicado de 1600 Oe.

consideramos campos mais baixos (ver figura 3-15(b)). Isso fica mais claro quando fazemos o gráfico da razão da energia de ativação para as duas histórias em função da temperatura reduzida (ver figura 3-16). Podemos ver que para 1600 Oe a razão U_{ZFC}/U_{FC} para a amostra polida é praticamente o dobro da observada para a amostra lixada em praticamente todo o intervalo de temperatura medido (ver figura 3-16(a)), indicando uma assimetria muito mais forte na situação da superfície polida. Chama a atenção também o rápido aumento da razão U_{ZFC}/U_{FC} para a amostra polida quando nos aproximamos da temperatura de transição. Já para campos mais baixos (como, por exemplo, 1000 Oe - ver figura 3-16(b)), a razão U_{ZFC}/U_{FC} é praticamente a mesma tanto para a amostra polida quanto para a amostra lixada.

Os resultados que obtivemos, a partir das medidas de relaxação magnética e do cálculo da energia de ativação, nos deixa com a sensação de que a assimetria das histórias ZFC e FC seja o resultado de uma combinação de fatores. De fato temos uma contribuição devida a barreira superficial, contribuição esta eliminada no lixamento. Entretanto, apenas em condições bastante específicas temos um destaque deste termo (i. e., para altos campos e altas temperaturas), o que demonstra que apenas a barreira superficial não explica a totalidade dos resultados obtidos. Devemos de fato ter algum outro mecanismo presente que também produza uma resposta assimétrica do sistema quanto a entrada/saída de fluxo da amostra. A necessidade de algum novo mecanismo de aprisionamento volumétrico, que possa induzir uma resposta assimétrica em curvas de histerese e de relaxação temporal, também foi ressaltada em estudos feitos em $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10}$ [19].

3.2.3 Em busca de outras evidências para a barreira superficial

Como apresentado na seção anterior, a influência da barreira superficial nas medidas de relaxação magnética não pode ser facilmente isolada em nossos dados. De fato, estes resultados sozinhos não nos fornecem informação suficiente para que possamos afirmar com convicção que a assimetria observada, assim como a sua supressão com o lixamento, sejam realmente causadas pela presença de uma barreira de Bean-Livingston. Procuramos então outras assinaturas da presença da barreira superficial.

Podemos visualizar uma primeira evidência de barreira superficial facilmente a partir dos resultados obtidos por Burlachkov, apresentados na seção 2.4. De fato, para um sistema onde

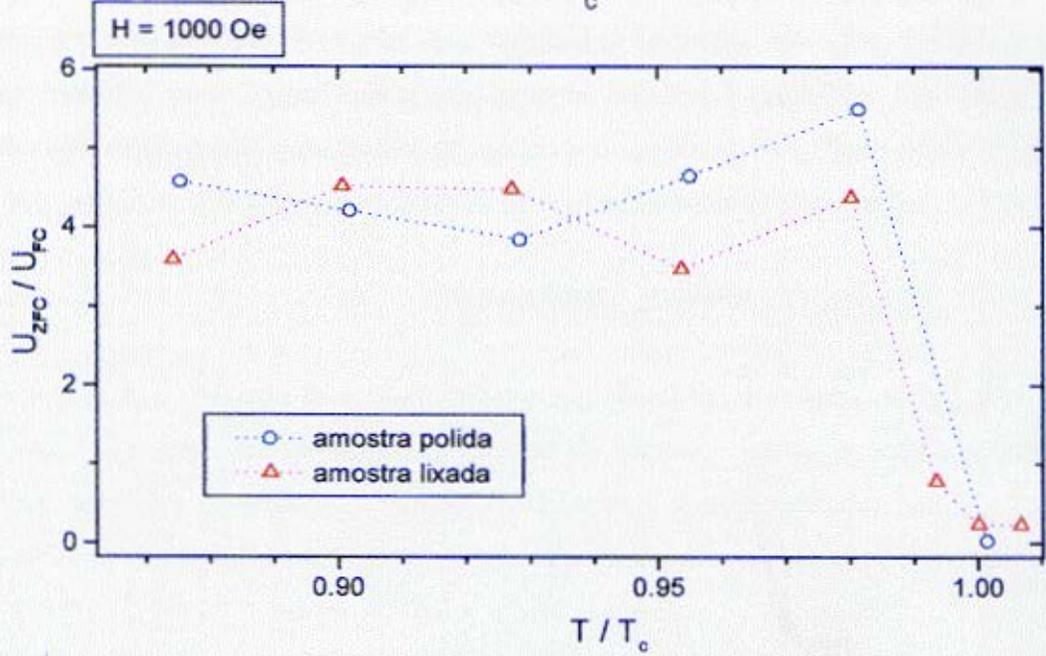
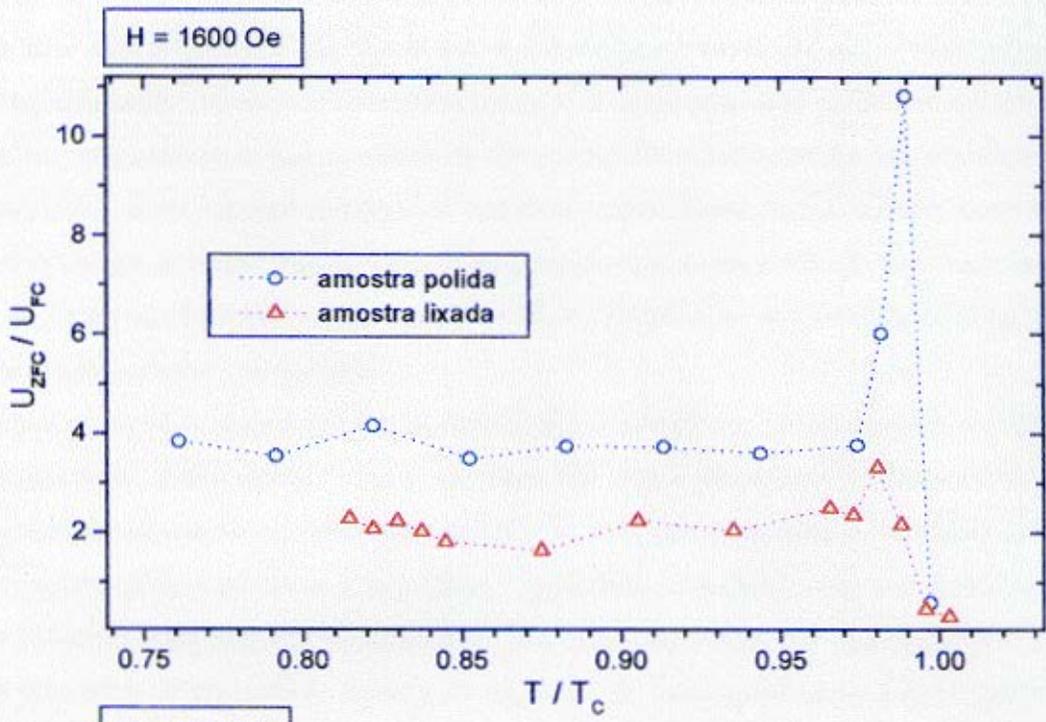


Figura 3-16: Gráficos da razão da energia de ativação para entrada (ZFC) e saída (FC) de campo em função da temperatura reduzida.

a dinâmica dos vórtices é determinada exclusivamente pela barreira superficial (i. e., sem a presença de pinning volumétrico), o valor da magnetização para a saída de fluxo é aproximadamente zero (equação 2.19). Ao observarmos as nossas curvas $M \times H$, entretanto, temos um comportamento fortemente histerético para todos os estados da superfície (ver figura 3-17). Este é um comportamento característico de um material com forte aprisionamento volumétrico, exatamente o oposto do caso considerado por Burlachkov. Desta forma, mesmo que a barreira superficial esteja presente, não temos por quê esperar que a magnetização seja zero durante a saída de fluxo. A observação mais cuidadosa da região próxima à transição entretanto revela um resultado bastante interessante.

Vemos que quanto mais degradada a superfície, maior o campo para o qual ocorre a transição supercondutora. Além disso, temos a abertura dos ramos ascendente e descendente de uma forma aproximadamente simétrica com relação ao zero de magnetização, abertura esta tanto maior quanto mais danificada a superfície. Este comportamento pode ser entendido como sendo devido a uma camada superficial de material danificado que apresenta propriedades físicas diferentes do material do interior da amostra. De fato, o lixamento a que submetemos a amostra, por mais delicado que tenha sido, fatalmente acaba por introduzir defeitos e tensões na rede cristalina numa camada de alguns microns próxima à superfície. Isto reduz o livre caminho médio eletrônico, o que leva a um aumento do parâmetro de Ginzburg-Landau κ . Por outro lado, sabemos que o campo magnético de transição depende linearmente de κ :

$$H_{c2} = \sqrt{2}\kappa H_c \quad (3.3)$$

Vemos então que o aumento de κ nesta camada superficial faz com que o campo crítico desta região seja maior que o campo crítico do interior da amostra. Assim, quando a amostra está no estado normal e começamos a reduzir lentamente o campo aplicado, temos a transição supercondutora inicialmente apenas nesta camada de κ mais alto (campo H^+ , figura 3-17). Continuando a abaixar o campo aplicado, temos um volume cada vez maior da amostra no estado supercondutor, aumentando o sinal magnético da amostra, até que atingimos o valor de campo aplicado onde ocorre a transição supercondutora de todo o interior da amostra (campo H^- , figura 3-17). A diferença no comportamento das curvas $M \times H$ próximas da transição

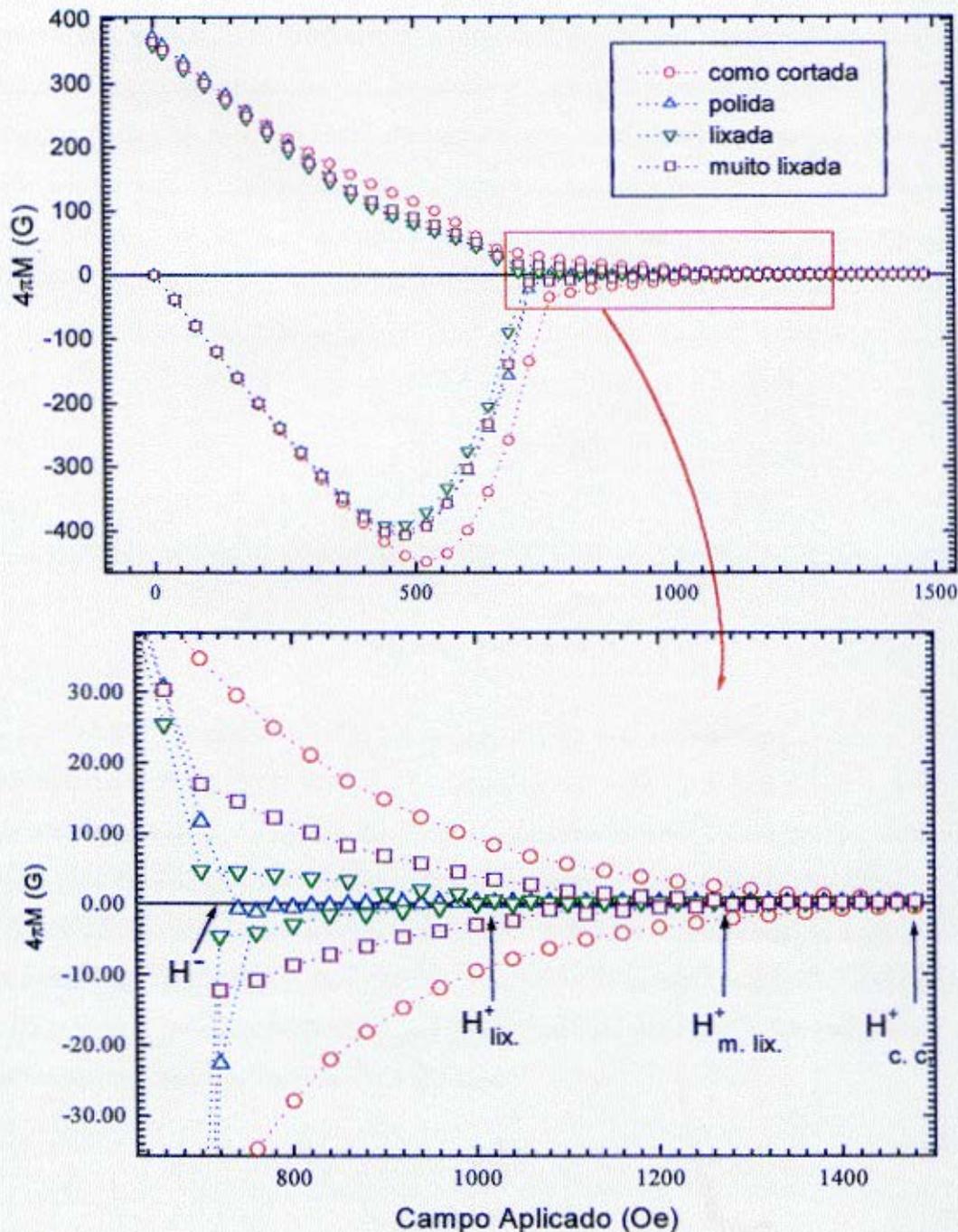


Figura 3-17: Curvas $M \times H$ para vários estados da superfície da barra monocristalina. No destaque vemos a abertura das curvas conforme degradamos a superfície.

para os diferentes estados da superfície deve-se então ao fato de que quanto mais danificada a superfície, tanto mais larga esta camada de κ mais alto; além disso, um lixamento mais vigoroso deve introduzir mais defeitos no material e assim o aumento $\Delta\kappa$ correspondente também deve ser maior. É importante ressaltar que ainda que estejamos sempre falando em “dois materiais” com *kappas* diferentes, não é isso evidentemente o que ocorre. De fato, o que devemos ter é uma variação contínua de κ conforme penetramos na amostra. Os valores de κ que calcularemos a seguir para a amostra lixada, assim como $\Delta\kappa$, devem então ser pensados como valores médios.

Podemos estimar o valor do parâmetro de Ginzburg-Landau κ a partir da equação (3.3) desde que tenhamos o valor do campo crítico termodinâmico H_c . Mas o campo crítico pode ser calculado a partir da integral da magnetização de equilíbrio em função do campo aplicado:

$$\int_0^{H_{c2}} M_{eq} dH = \frac{H_c^2}{8\pi} \quad (3.4)$$

Resta o problema de avaliar a curva $M_{eq}(H)$, o que pode ser feito considerando que [39]

$$M_{eq} = \frac{1}{2} (M^+ + M^-)$$

onde M^+ e M^- denotam o valor da magnetização nos ramos descendente e ascendente respectivamente. Procedendo desta forma obtemos um valor de $\kappa = 2.2$ para o material não danificado, enquanto os valores de $\Delta\kappa$ para os diferentes estados da superfície calculados para $T = 8K$ estão listado na tabela I. Este valor de κ para o material não danificado é consistente com dados da literatura para amostras de nióbio com forte aprisionamento volumétrico [27]. No próximo capítulo voltaremos a discutir esta idéia da camada superficial de alto κ e sua relevância para a retenção de fluxo na amostra. Por hora voltemos à discussão sobre a busca de evidências da presença da barreira superficial.

Tabela I

Estado da Superfície	$\Delta\kappa$
como cortada	1.77
polida	0
pouco lixada	1.40
lixada	1.57

Como vimos acima, a presença de *pinning* volumétrico (e superficial também, particularmente após o lixamento) acaba mascarando uma possível assinatura da barreira de Bean-Livingston, que seria $M_s = 0$. Mas há ainda um outro teste que podemos fazer utilizando nossas medidas de $M \times H$. A existência da barreira superficial dificulta a entrada de fluxo na amostra. Isso significa que só teremos penetração de fluxo no material em campos aplicados superiores a um certo valor $H_p > H_{c1}$. Ora, sendo o valor de H_p dependente basicamente do estado da superfície, esperaríamos que com o lixamento este valor se aproxime de H_{c1} (i. e., diminua). Podemos obter o valor de H_p observando para que valor do campo aplicado temos o final do trecho linear Meissner (ou seja, quando começa a ocorrer a penetração de fluxo na amostra). Procedendo desta forma, obtivemos os valores de H_p para os diversos estados da superfície listados na tabela II, primeira coluna. No entanto, este procedimento não é muito preciso pela dificuldade de determinar com precisão o momento em que começa a ocorrer o desvio do comportamento linear. Um segundo método para determinar o valor de H_p consiste em observar que, partindo do modelo de Bean [4], podemos escrever que

$$B = \frac{(H - H_p)^2}{H^*} - \frac{(H - H_p)^3}{3H^{*2}} \quad (3.5)$$

onde H^* é o campo aplicado onde o perfil de campo magnético atinge o centro da amostra. Assim, fazendo o gráfico de $\sqrt{B} \times H$, podemos obter H_p (ou H_{c1} , caso o efeito da barreira superficial seja desprezível), sendo este o ponto em que temos a mudança do regime $B = 0$ (Meissner completo) para a situação de penetração de campo (que corresponderia a um trecho linear no gráfico $\sqrt{B} \times H$, caso desconsideremos a contribuição do segundo termo à direita na

equação 3.5). Procedendo desta forma, ver figura 3-18, obtivemos os valores de H_p apresentados na segunda coluna da tabela II. Os resultados obtidos pelos dois métodos são consistentes, mas não observamos (dentro da precisão dos métodos adotados) qualquer variação de H_p , exceto para o caso da amostra como cortada.

Tabela II

Estado da Superfície	H_p (Oe) (1º Método)	H_p (Oe) (2º Método)
como cortada	340 ±40	310 ±15
polida	250 ±40	200 ±15
pouco lixada	250 ±40	200 ±15
lixada	250 ±40	200 ±15

Medidas $M \times T$ e fluxo retido

Como vimos na seção anterior, a análise das medidas de magnetização *vs* campo aplicado revelaram duas características importantes da nossa amostra que não haviam sido consideradas inicialmente. Uma foi a presença de forte aprisionamento volumétrico; a segunda foi o surgimento de uma casca de material de alto κ devido ao lixamento. A presença destes dois fatores acabou por mascarar a contribuição da barreira superficial nas diversas medidas realizadas, tornando dúbia uma discussão mais quantitativa e conclusiva deste efeito. Resta-nos ainda a análise das medidas da magnetização *vs* temperatura, que virão tanto confirmar a discussão anterior quanto apresentar um novo efeito que nos levará para a segunda parte deste trabalho.

Uma típica medida $M \times T$ para a barra monocristalina é apresentada na figura 3-19 (a). A magnetização é calculada dividindo o momento magnético pelo volume da amostra. Vemos então que há uma grande retenção de fluxo na amostra, já que o módulo da magnetização para a curva *FCC* é muito inferior para temperaturas baixas do que o observado para a curva *ZFC*. Este comportamento é condizente com um forte aprisionamento volumétrico. No entanto, é a observação mais detalhada da região próxima à transição que apresenta resultados mais interessantes. Ampliando esta região, como mostrado na figura 3-19 (b), vemos que não apenas nós temos a transição supercondutora ocorrendo a uma temperatura mais alta para a amostra com a superfície mais degradada, como observamos também que a curva *FCC* apresenta um máximo

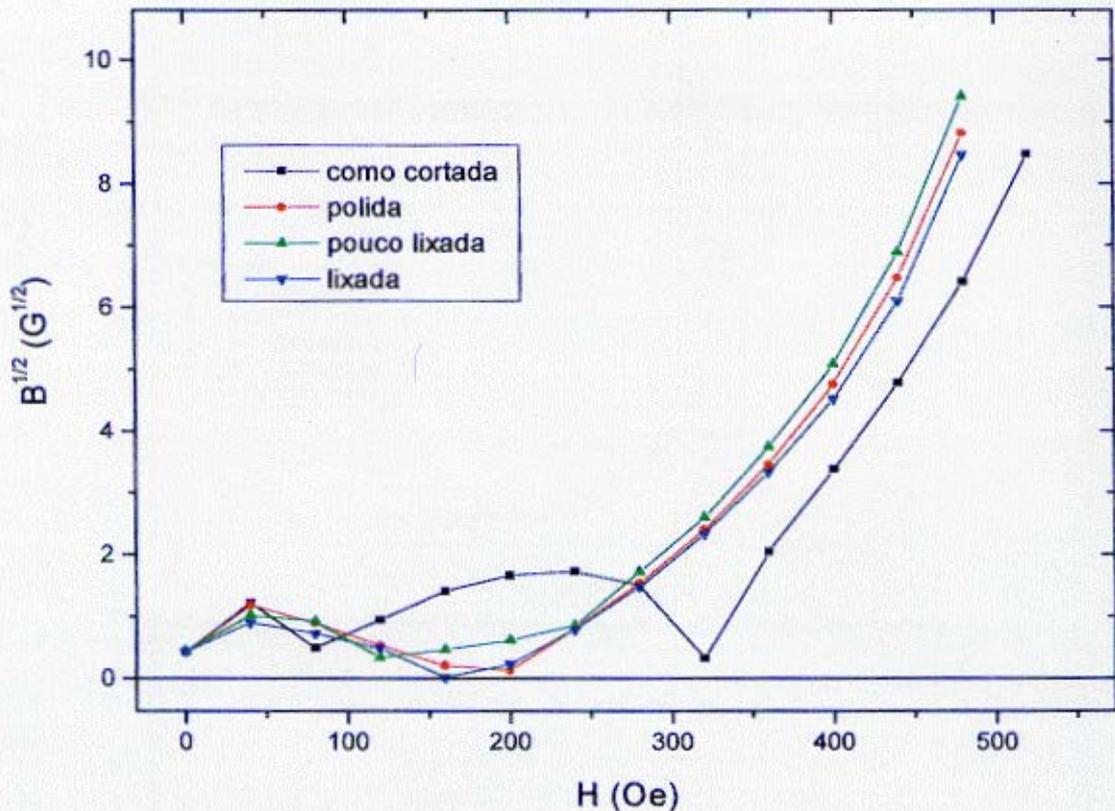


Figura 3-18: Determinação de H_p para a barra de nióbio monocristalino a partir do gráfico de $B^{1/2} \times H$. Observe que não temos variação de H_p com o lixamento.

paramagnético bem definido logo após a transição. A discussão deste sinal paramagnético e sua possível associação com a presença de uma casca de material de alto κ e fluxo retido constituirá a segunda parte deste trabalho.

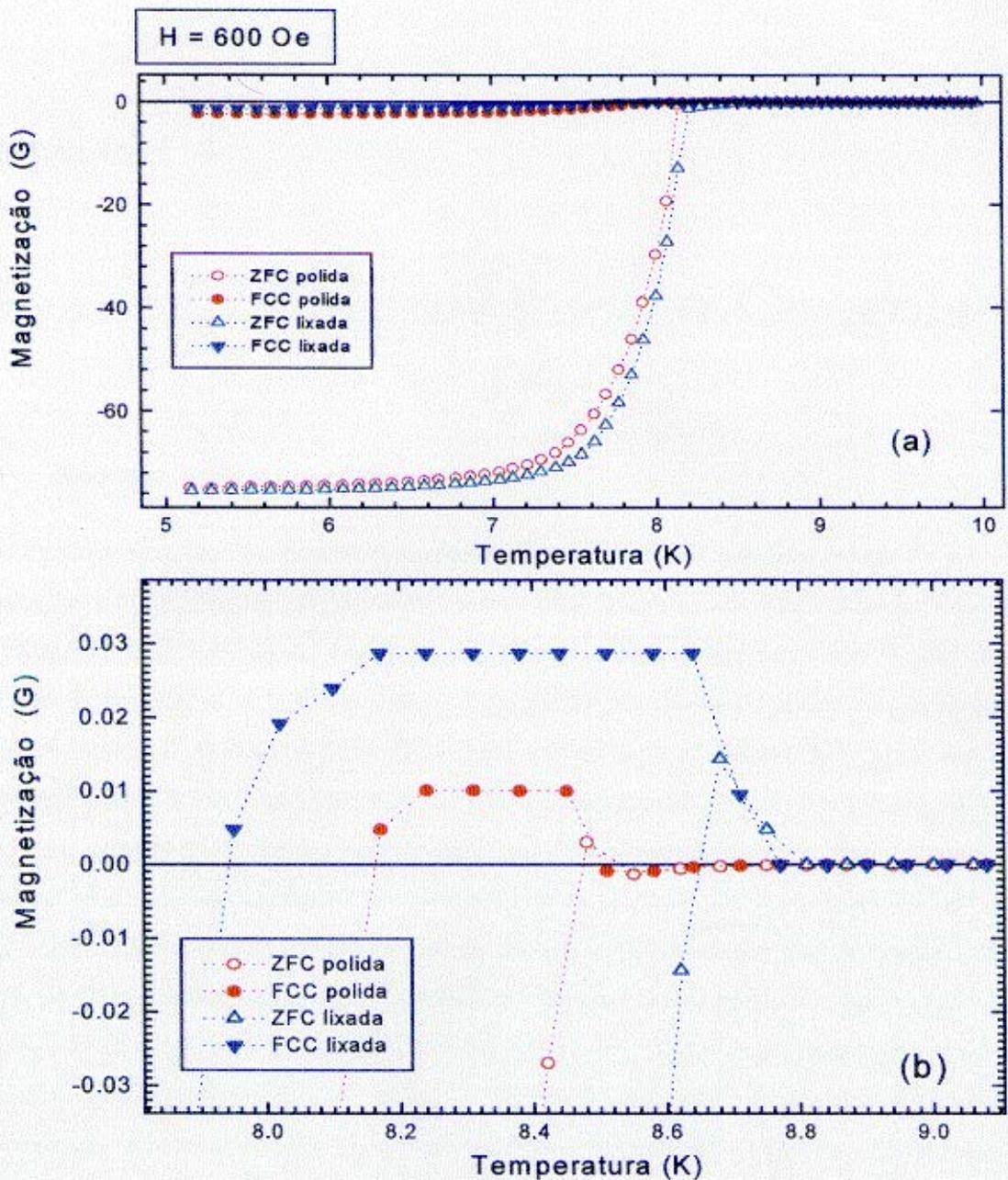


Figura 3-19: Curvas da magnetização vs temperatura para 600 Oe para barra de nióbio monocristalino. (a) curva completa, ressaltando a grande retenção de fluxo na amostra; (b) Ampliação da região próxima a transição supercondutora, revelando a presença de um pico paramagnético.

Capítulo 4

Momento Paramagnético Congelado

4.1 Introdução

Recentemente surgiram na literatura trabalhos onde observa-se o aparecimento de um estado paramagnético [10][30] para supercondutores de alta temperatura crítica. Este efeito foi denominado originalmente Efeito Wohleben ou Efeito Meissner Paramagnético (PME). Em seu trabalho, Braunisch et al [10] apresentam uma detalhada discussão sobre o aparecimento de PME em amostras de $Bi_2Sr_2CaCu_2O_x$. Após excluir a possibilidade deste efeito ser um artifício experimental, eles observaram ser este estado paramagnético um estado de equilíbrio perfeitamente reproduzível, sendo a amplitude do sinal paramagnético tanto maior quanto menor o campo aplicado (ver figura 4-1). De fato, várias medidas com condições iniciais apenas ligeiramente diferentes sempre resultavam no mesmo comportamento para a magnetização em função da temperatura, assim como permitindo o estado paramagnético evoluir temporalmente não introduzia nenhuma relaxação magnética mensurável. Entretanto, nem todas as amostras estudadas apresentavam PME e a busca de alguma característica básica que diferenciasse as amostras que apresentam este efeito das demais foi infrutífera. O mesmo tipo de momento paramagnético foi observado em outros supercondutores de alta temperatura crítica, como por exemplo em monocristais de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [30].

Uma possível explicação para a origem deste efeito seria o surgimento de correntes espontâneas em junções π entre os grãos do material, que poderiam então produzir um momento magnético paramagnético [24][11]. Para que tenhamos estas junções π , entretanto, é necessário

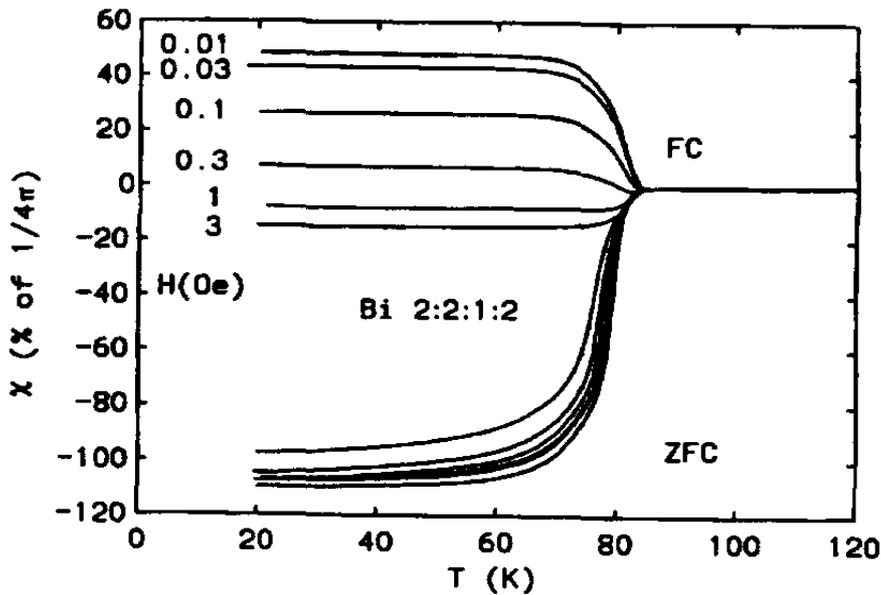


Figura 4-1: Susceptibilidades ZFC e FC em função da temperatura exibindo momento paramagnético congelado para campos muito baixos (extraído de [10]).

que a função de onda macroscópica destes materiais seja anisotrópica¹. Em uma junção π nós temos uma diferença de fase adicional entre os dois lados da junção de π , o que significaria uma mudança de sinal do parâmetro de ordem em relação ao eixo de simetria. Este foi um dos motivos do interesse que estes trabalhos despertaram, já que esta seria mais uma evidência a ser contabilizada a favor da hipótese de que a função de onda macroscópica nas cerâmicas de alta temperatura crítica tenha simetria tipo d . Sigrist e Rice [32] demonstraram que no caso de um anel com uma junção π a energia livre é minimizada com o surgimento de uma corrente espontânea no anel. Daí que uma coleção destes anéis poderia gerar um sinal paramagnético.

Por outro lado, isto incentivou também a busca deste mesmo efeito para supercondutores clássicos, que indubitavelmente apresentam uma função de onda s e para os quais, portanto, a hipótese das junções π não se aplicam. De fato, Minhaj et al. [35] e Kostić et al [23]. observaram este mesmo efeito em amostras de nióbio. Kostić et al observam em seu trabalho o aparecimento de momento paramagnético congelado em vários discos de nióbio policristalino com várias razões

¹Podemos ter uma junção π também se houver uma impureza magnética na junção.

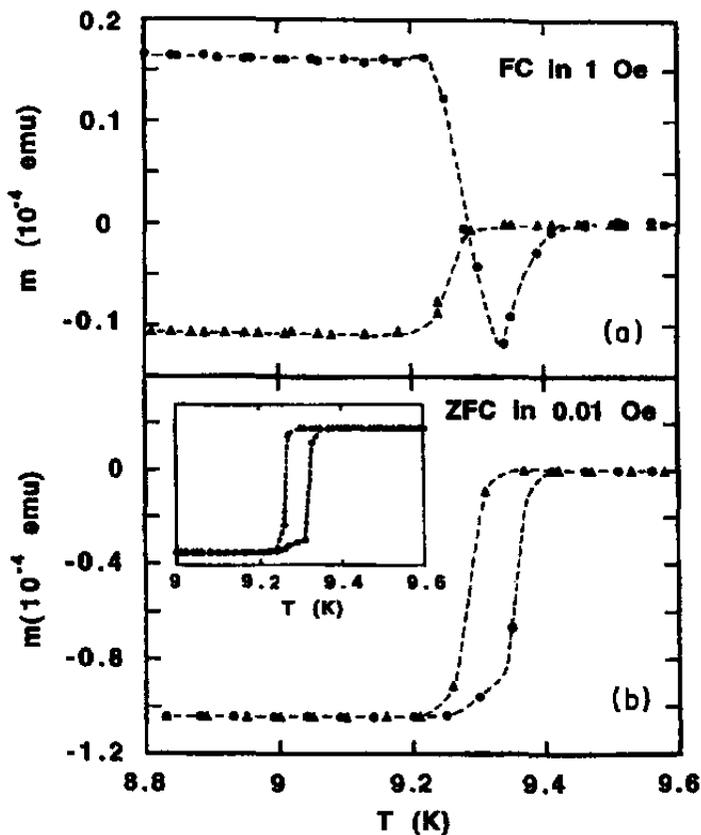


Figura 4-2: Medidas em amostras policristalinas de nióbio. (a) Magnetização FC para $H = 1Oe$ (b) Determinação de T_c a partir de medidas FC para $H = 0.01Oe$. Em ambos os gráficos os círculos (triângulos) indicam a medida feita antes (depois) do polimento das faces da amostra. Destaque: medida ZFC para outra amostra a $H = 0.05Oe$. (Extraído de [23]).

de espessura e diâmetro. Novamente nem todas as amostras estudadas apresentaram PME, mas verificou-se que o polimento das faces das amostras suprimiam o sinal paramagnético (ver figura 4-2). Também foi observado uma diferença na temperatura de transição entre a amostra antes e depois do polimento. A interpretação proposta para estes resultados é a presença de uma camada superficial com uma temperatura crítica superior à do resto do material e, como o polimento suprime o momento paramagnético, parece razoável supor que o próprio momento paramagnético seja causado pela presença desta camada superficial.

Um possível mecanismo que associa a presença de uma casca de alto T_c e o surgimento

de momento paramagnético foi proposto por Koshelev e Larkin [22]. Eles mostraram que se tivermos um resfriamento inomogêneo da amostra ou ainda uma camada superficial com uma temperatura crítica maior do que a temperatura crítica do interior da amostra, esta casca superficial ficaria supercondutora antes do resto da amostra, comprimindo o fluxo magnético no interior do material e o mantendo aprisionado, originando o esperado momento paramagnético. De acordo com estas idéias, para que houvesse uma compressão de fluxo grande o suficiente para que o momento magnético da amostra fique paramagnético, deve-se ter baixos campos, onde a rede de vórtices está bem diluída e pode então ser facilmente comprimida. Isto está de acordo com o fato de que o efeito paramagnético foi sempre observado a baixos campos (inferiores a 10 Oe).

4.2 Procedimento Experimental

4.2.1 Equipamento

O equipamento utilizado nesta segunda parte do trabalho foi o mesmo magnetômetro SQUID MPMS-5, já descrito nas seções 3.1 e 3.1.1, dispensando aqui maiores detalhes. Nos restringiremos então a caracterizar a nova amostra que utilizamos para testar a hipótese do aparecimento de momento paramagnético estar associado com a presença de uma casca de alto κ (como detalharemos a seguir); também descreveremos os suportes de amostra feitos para esta segunda amostra. Fora estes dois pontos, todo o procedimento experimental é exatamente o mesmo do utilizado na primeira parte deste trabalho.

Caracterização da amostra

Para fazermos um análogo da hipótese de uma camada de alto κ e verificarmos se o surgimento do momento paramagnético está ou não associado com ela, resolvemos realizar uma nova sequência de medidas em um anel de nióbio laminado policristalino, esquematizado na figura 4-3. Esta amostra foi submetida durante a sua preparação a trabalhos mecânicos intensos durante sua usinagem em tórno mecânico, apresentando grande densidade de defeitos estruturais tanto volumétricos quanto (principalmente) superficiais.

Tal como feito na primeira parte deste trabalho, aqui também realizamos duas sequências de

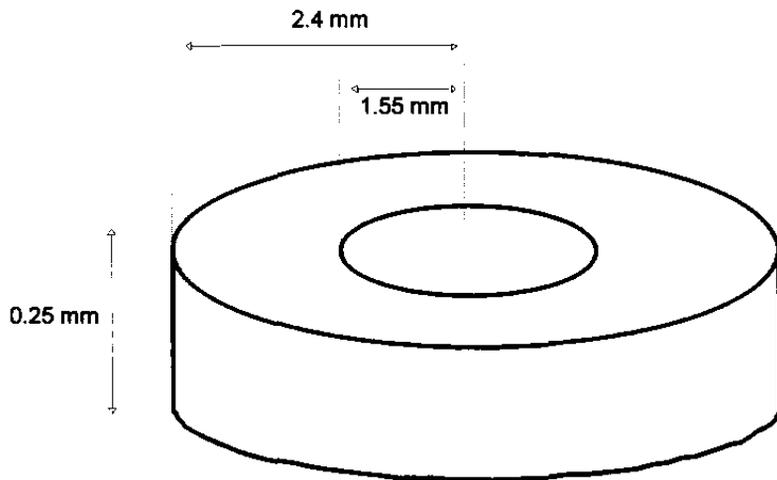


Figura 4-3: Representação esquemática do anel de nióbio policristalino.

medidas para dois estados distintos da superfície da amostra. Inicialmente medimos a amostra tal *como cortada*; a seguir ela foi submetida a um ataque químico de polimento análogo ao aplicado à barra monocristalina. Repetiu-se então as medidas para a amostra *polida*. Além de fazer as medidas variando o estado da superfície, agora realizamos também medidas variando a orientação da amostra com relação ao campo aplicado. Desta forma podemos comparar os resultados obtidos para o campo magnético aplicado paralela ou perpendicularmente ao plano do anel.

Suporte de amostra

Para que possamos realizar as medidas com o anel tanto paralelo quanto perpendicular ao campo aplicado, tivemos de desenvolver dois novos suportes de amostra. Para o caso do campo aplicado paralelamente ao plano do anel, o suporte consiste simplesmente de um canudo de refresco no qual foi inserido dois pequenos pedaços (argolas) cortados de um canudo idêntico ao primeiro (ver figura 4-4(b)). Estes dois pedaços são dobrados em forma de “U” e entram justos no canudo, onde então encaixamos a amostra. Pequenos furos são feitos tanto no canudo externo quanto nos dois pedaços internos, de forma a facilitar o fluxo de hélio na amostra.

Já para colocarmos a amostra perpendicularmente ao campo magnético, utilizamos um suporte um pouco mais complicado. Primeiramente encaixamos a amostra em um canudo de

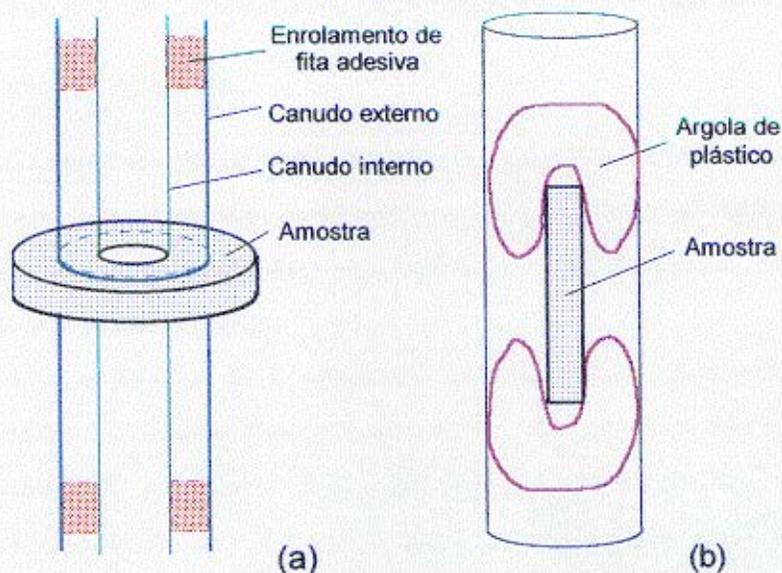


Figura 4-4: Esquema dos suportes de amostra usados (a) para medidas com campo aplicado perpendicular e (b) com campo aplicado paralelo ao plano da amostra.

refresco que entrava justo no furo do centro da amostra; com este canudo preso, centramos a amostra e evitamos que ela se mova na horizontal (ver figura 4-4(a)). A amostra poderia entretanto se mover verticalmente. Para impedir isto, ao mesmo tempo em que garantimos a horizontalidade da amostra, usamos um outro canudo de diâmetro maior que o anterior. Este canudo foi cuidadosamente cortado ao meio de forma que a amostra pudesse ser presa entre as suas duas metades. Para evitar que os canudos se desalinhassem ao longo das medidas e assim surgisse um torque na amostra, foi feito dois enrolamentos com fita adesiva acima e abaixo da região central dos canudos, de tal forma que os canudos encaixem justos um no outro e o suporte como um todo fique rígido. Novamente todos os canudos tiveram de ser furados para permitir o livre fluxo de hélio até a amostra. Em ambos os suportes o posicionamento correto da amostra não era um processo imediato, ainda que uma vez posicionada, a rigidez dos suportes impedia qualquer deslocamento da amostra ao longo das medidas.

4.3 Observação de momento paramagnético em nióbio

4.3.1 Barra monocristalina

Como apresentado rapidamente no final da primeira parte deste trabalho, nós observamos inicialmente a presença de momento paramagnético congelado nas medidas feitas na barra monocristalina, sendo esta a motivação para esta exploração mais detalhada. Vamos então tratar este assunto com maior detalhe agora.

Vamos considerar as medidas da magnetização em função da temperatura para três campos magnéticos aplicados: 600, 1200 e 1600 *Oe* (figuras 4-5 e 4-6). Podemos então observar que para o campo mais baixo (600 *Oe* - figura 4-5) tanto a curva para a amostra polida quanto para a amostra lixada apresentam um claro trecho paramagnético; mais que isso, vemos que com o polimento a amplitude deste trecho paramagnético é fortemente reduzido, até desaparecer para o caso da amostra muito polida. Isto é uma evidência de que a origem deste momento magnético congelado envolve algum mecanismo de superfície. É importante observar também que a transição supercondutora é deslocada para temperaturas maiores, para a amostra lixada. Este é um resultado análogo ao observado nas curvas $M \times H$, onde a transição ocorria a campos mais altos, para uma dada temperatura, conforme degradávamos a superfície. Isto nos faz pensar que a camada de alto κ seja também a responsável pelo sinal paramagnético que observamos nestas medidas. Finalmente, observamos ainda que conforme aumentamos o campo magnético aplicado, temos a supressão do sinal paramagnético. Assim, desaparece o sinal para a amostra polida, mas não para a lixada, já em 1200 *Oe*. Em $H = 1600$ *Oe*, o sinal paramagnético desaparece para ambos os casos, embora ainda apareça um longo ($\Delta T \simeq 1K$) patamar diamagnético, indicando retenção de fluxo para a amostra lixada (figura 4-6).

Nossa interpretação para estes resultados está baseada na presença desta casca de κ mais alto e em como ela favorece a retenção de fluxo no material. O ponto central a ser analisado, para que possamos entender como esta casca de material estragado pode levar a amostra a apresentar um momento paramagnético, é observar que esta capa superficial apresentaria evidentemente propriedades diferentes do resto da amostra, entre elas uma temperatura de transição ($T_c(H)$) mais alta.

Atingindo primeiro o estado supercondutor, esta camada de κ maior comprime fluxo no

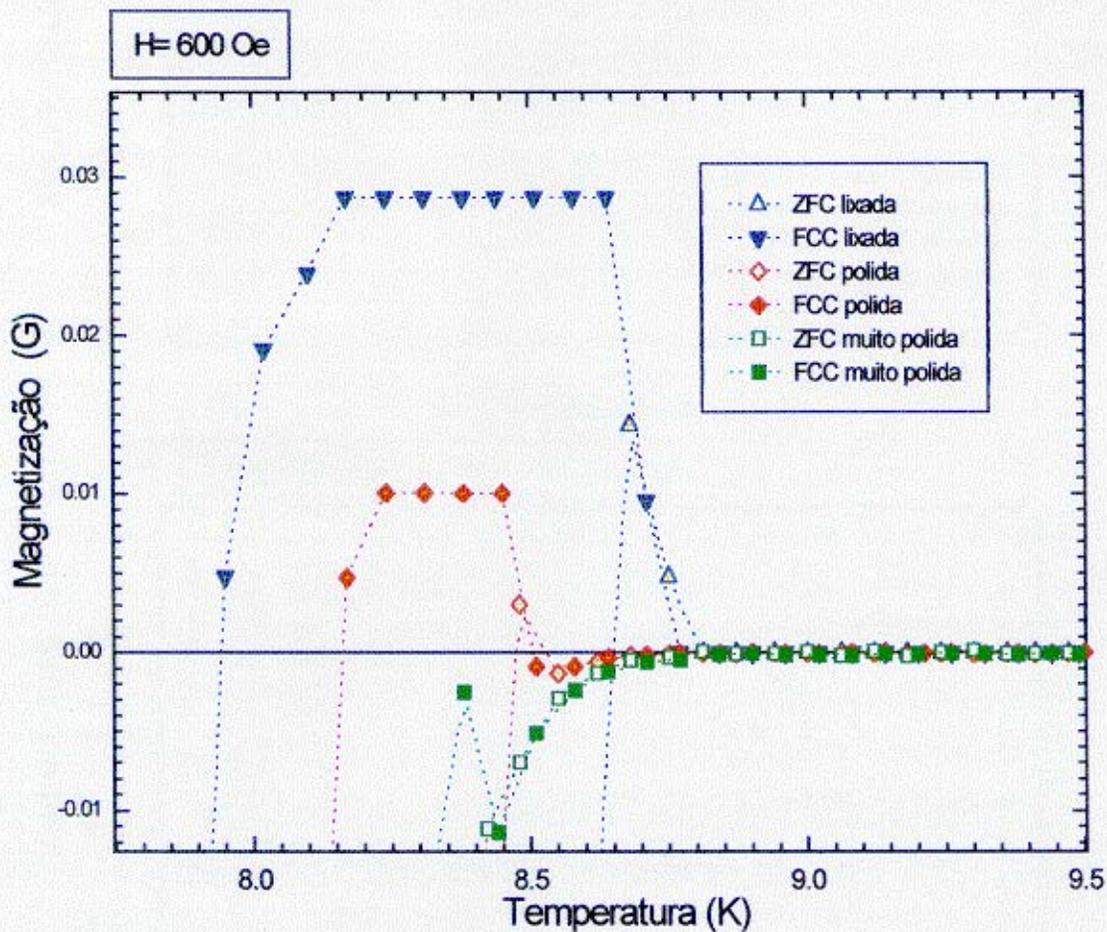


Figura 4-5: Ampliação da curva $M \times T$ para $H = 600 \text{ Oe}$ próximo da transição supercondutora, mostrando a redução do sinal paramagnético com o polimento da amostra.

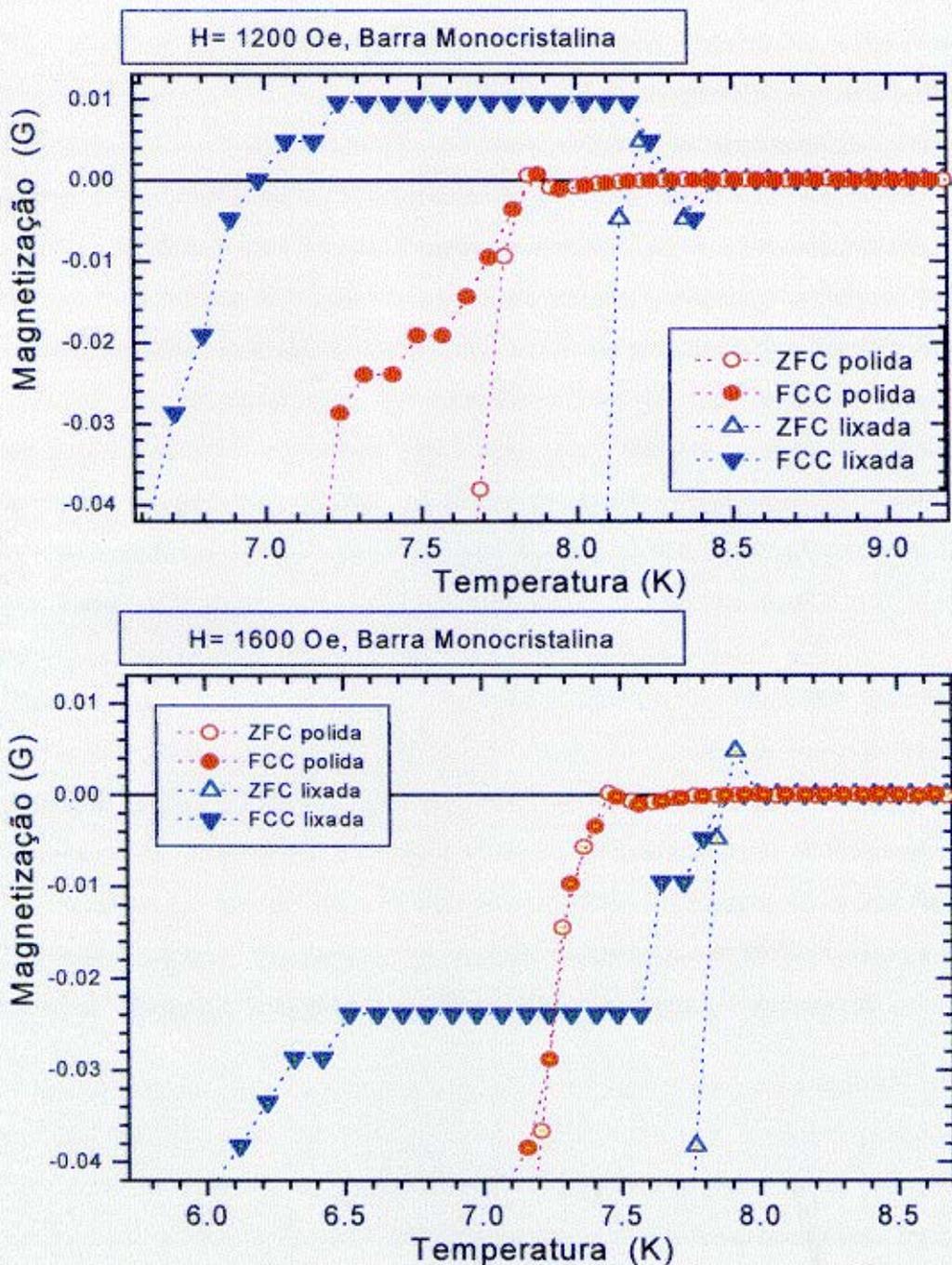


Figura 4-6: Gráficos da magnetização em função da temperatura para $H = 1200\text{Oe}$ e $H = 1600\text{Oe}$, onde podemos ver a supressão do sinal paramagnético com o aumento do campo aplicado.

interior da amostra. Quando o volume do material torna-se supercondutor também, tenderá a expulsar o excesso de fluxo. No entanto, a casca de κ mais alto, estando supercondutora, não permitirá que o fluxo magnético a atravesse e saia da amostra. O fluxo fica então aprisionado, gerando um sinal paramagnético. Entretanto, manter muito fluxo retido significa ter boa parte do volume do material no estado normal, sendo esta configuração tanto mais desfavorável energeticamente quanto mais baixa é a temperatura (e, portanto, maior a energia de condensação). Chega-se assim eventualmente a uma situação em que finalmente a camada externa de alto κ não consegue mais reter todo aquele campo no seu interior e temos a expulsão de parte deste fluxo da amostra. Neste modelo, o surgimento do momento paramagnético depende de dois processos antagônicos: por um lado temos a expulsão de fluxo da casca de alto κ que produz um sinal diamagnético; por outro lado temos fluxo retido tanto nos centros de aprisionamento da casca quanto no interior da amostra, o que produz um sinal paramagnético. Observemos, no entanto, que mesmo apresentando uma resposta diamagnética para temperaturas mais baixas, ainda permanece uma grande quantidade de fluxo retido na amostra, dado a grande densidade de centros de aprisionamento, tanto volumétricos quanto superficiais.

A discussão que apresentamos aqui é fortemente apoiada em discussões anteriores sobre *Estado Meissner Paramagnético* (já citadas na introdução da segunda parte deste trabalho), onde sempre se argumenta que tal efeito só poderia ser detectado a campos baixos (da ordem de 1 Oe ou menos). Entretanto, não vemos qualquer contradição entre as idéias apresentadas naqueles trabalhos e o fato de termos observado tal efeito em campos da ordem de 1000 Oe. Vejamos a seguir algumas diferenças entre os nossos resultados e os apresentados na seção 4.1, e porque estas diferenças mais confirmam nossa hipótese do que a enfraquecem:

1. O sinal paramagnético observado a campos baixos apresenta uma amplitude comparável ao sinal Meissner total da amostra. Já no nosso caso, este momento paramagnético é algo entre 2 e 4 ordens de grandeza menor que o sinal Meissner total, sendo necessária uma grande ampliação da região próxima da transição supercondutora para que possamos observá-lo. Dentro da idéia de fluxo retido isto é razoável, já que para campos baixos nós temos uma rede de vórtices muito mais diluída e, assim, é muito mais fácil comprimí-la, levando ao surgimento de maiores momentos paramagnéticos.

2. Outro ponto é justamente o fato do sinal paramagnético que nós observamos estar restrito a um pequeno trecho próximo a transição, enquanto que nos demais trabalhos o momento paramagnético permanece inalterado mesmo quando a amostra é resfriada até temperaturas bem abaixo da temperatura de transição. Isto também é condizente com a idéia de fluxo retido. De fato, a campos altos a repulsão entre os vórtices, assim como a energia magnética do sistema, são muito maiores. Isso significa que energeticamente é muito “caro” manter este fluxo comprimido no material, neste caso. Portanto, é razoável esperar que em um dado momento o sistema acabe por expulsar o excesso de fluxo e o momento magnético volte a ser diamagnético.

O surgimento de momento paramagnético devido a uma diferença do valor de κ entre a casca e o miolo da amostra, devido à degradação da superfície, deve ser mais facilmente observável nos supercondutores clássicos do que nos materiais de alta temperatura crítica. Isto porque qualquer pequena mudança no κ da superfície é proporcionalmente muito maior nos supercondutores clássicos, já que estes apresentam um κ muito menor ($\kappa < 5$) que as cerâmicas de alto T_c ($\kappa \simeq 100$).

Acreditamos ainda que este pode não ser o único mecanismo capaz de produzir a compressão de fluxo no interior da amostra. Existe também a possibilidade de que a capa de supercondutividade superficial possa causar o mesmo efeito, na configuração de campo paralelo à superfície da amostra [26]. Esta seria uma possível explicação para a observação do efeito na amostra polida. No entanto, como após o polimento final o momento paramagnético desaparece (ver figura 4-5), acreditamos que simplesmente o primeiro polimento químico que fizemos não tenha sido suficiente para eliminar toda a camada superficial defeituosa, gerada pelo corte da amostra. Desta forma, teríamos a comparação não entre uma amostra lisa com uma lixada (como acreditávamos inicialmente), mas sim entre dois níveis diferentes de degradação da superfície.

4.3.2 Anel policristalino

Se a hipótese de que o momento paramagnético congelado deve-se a compressão de fluxo no interior da amostra for verdadeira, então este efeito deve depender fortemente da geometria do nosso problema. Procedemos então a um teste da nossa idéia fazendo uma nova série de medidas, desta vez em uma amostra em forma de anel de nióbio *laminado*, descrita na seção

4.2.1. A idéia aqui é simular esta camada de kappa mais alto como sendo o anel em si. Ao aplicarmos o campo magnético perpendicularmente ao plano do anel nós teremos fluxo retido tanto no buraco quanto no próprio material da amostra, da mesma forma que o fluxo ficava retido no interior da barra monocristalina. Ao aplicarmos o campo paralelamente ao plano do anel, teremos fluxo retido em uma região muito menor e esperamos que o sinal paramagnético seja muito reduzido.

Inicialmente realizamos várias medidas com a amostra tal como cortada, estando então a superfície do material extremamente danificada e assim devendo apresentar um sinal paramagnético acentuado. A seguir procedemos a uma decapagem química onde reduzimos a massa da amostra quase pela metade (de 47 mg para 26 mg) de forma a eliminar esta capa superficial totalmente e repetimos as medidas. Comparando as medidas da magnetização *vs* campo aplicado para a amostra como cortada e depois de polida (figura 4-7), observamos a presença aqui também, para a amostra como cortada, de um deslocamento do campo crítico H_{c2} para valores mais altos, como era esperado. Isto significa que há nesta amostra uma camada de alto κ e devemos ter um sinal paramagnético devido ao campo aprisionado no material da amostra também, e não só o retido no buraco do anel.

As medidas de magnetização versus temperatura com o campo magnético aplicado perpendicularmente ao plano da amostra trazem um resultado interessante. Para campos baixos (por exemplo 10 Oe, ver figura 4-8) temos, como esperado, uma grande quantidade de fluxo retido na amostra, sendo que o valor da magnetização permanece com um valor paramagnético constante ao longo de todo intervalo de temperatura medido tanto para a amostra como cortada quanto para a amostra polida. Já para um campo de 100 Oe (ver figura 4-8) nós vemos primeiramente que a corrente de blindagem para a amostra polida não é suficiente para manter tanto fluxo retido e podemos observar que, após um pico paramagnético logo após a transição supercondutora, o valor da magnetização para a FCC cai para um valor diamagnético de equilíbrio, permanecendo então constante até temperaturas da ordem de 5 K. Para a amostra como cortada, a magnetização ainda permanece paramagnética em todo o intervalo de temperatura observado, mas passa por um máximo logo abaixo da temperatura crítica antes de atingir o seu valor de equilíbrio. Acreditamos que este máximo deva-se ao fluxo que inicialmente permaneceu comprimido no material da amostra, e de uma forma análoga ao observado na barra

monocristalina, acaba por ser expulso com o resfriamento da amostra . No entanto, as curvas *FCW* para ambos os estados da superfície permanecem paramagnéticas sempre. Esta diferença entre as curvas *FCC* e *FCW* deve-se ao rápido resfriamento da amostra na curva *FCW*, não permitindo uma grande expulsão de fluxo. Já na medida *FCC*, o resfriamento é lento, favorecendo uma maior expulsão de fluxo da amostra. Para as mesmas medidas feitas em 300 *Oe* (ver figura 4-9), tanto a *FCC* quanto a *FCW* para a amostra polida apresentam uma magnetização diamagnética para baixas temperaturas. Observemos ainda que o valor máximo da razão $M/M_{Meissner}$ diminui conforme aumentamos o campo aplicado (ver figuras 4-8 e 4-9). Isto comprova o argumento que apresentamos na seção 4.3.1, onde consideramos que não há paradoxo em observar momentos paramagnéticos a campos tão altos quanto 500 *Oe*, desde que a amplitude destes momentos fosse menor do que os valores observados a campos baixos, da ordem de 1 *Oe*.

Até aqui, o comportamento do anel policristalino tem sido condizente com a idéia de ser o momento paramagnético congelado causado por fluxo retido devido a uma casca de κ mais alto. Vamos agora fazer o teste de aplicar o campo magnético paralelamente à face do anel. Neste caso, não temos fluxo aprisionado no furo da amostra e, desconsiderando aspectos de geometria, a situação seria análoga ao caso da barra monocristalina. Observando então o resultado obtido para um campo de 100 *Oe* (ver figura 4-10), temos que para a curva *FCC*, para a amostra como cortada, próximo a transição supercondutora, ocorre um pequeno trecho paramagnético muito semelhante aos observados na barra monocristalina. A redução no valor do máximo paramagnético para a medida feita com o campo aplicado paralelamente ao plano da amostra, quando comparado com a situação de campo aplicado perpendicularmente, reforça a tese de ser este efeito devido a retenção de fluxo na amostra. O polimento químico da amostra, entretanto, reduziu o intervalo de temperatura em que aparece o sinal paramagnético mas não reduziu sua amplitude.

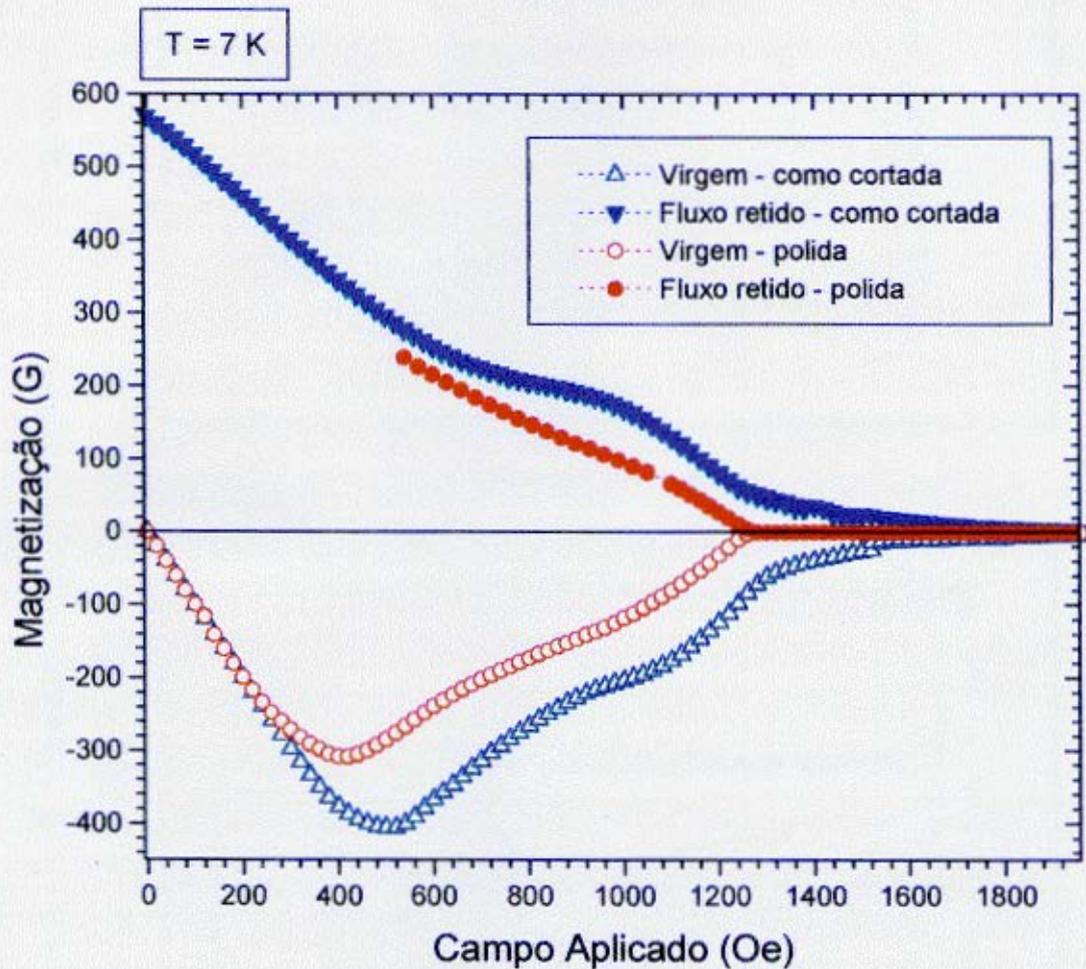


Figura 4-7: Gráfico da magnetização em função do campo aplicado para o anel policristalino (campo aplicado perpendicularmente ao plano do anel), ressaltando o deslocamento de H_{c2} com o polimento.

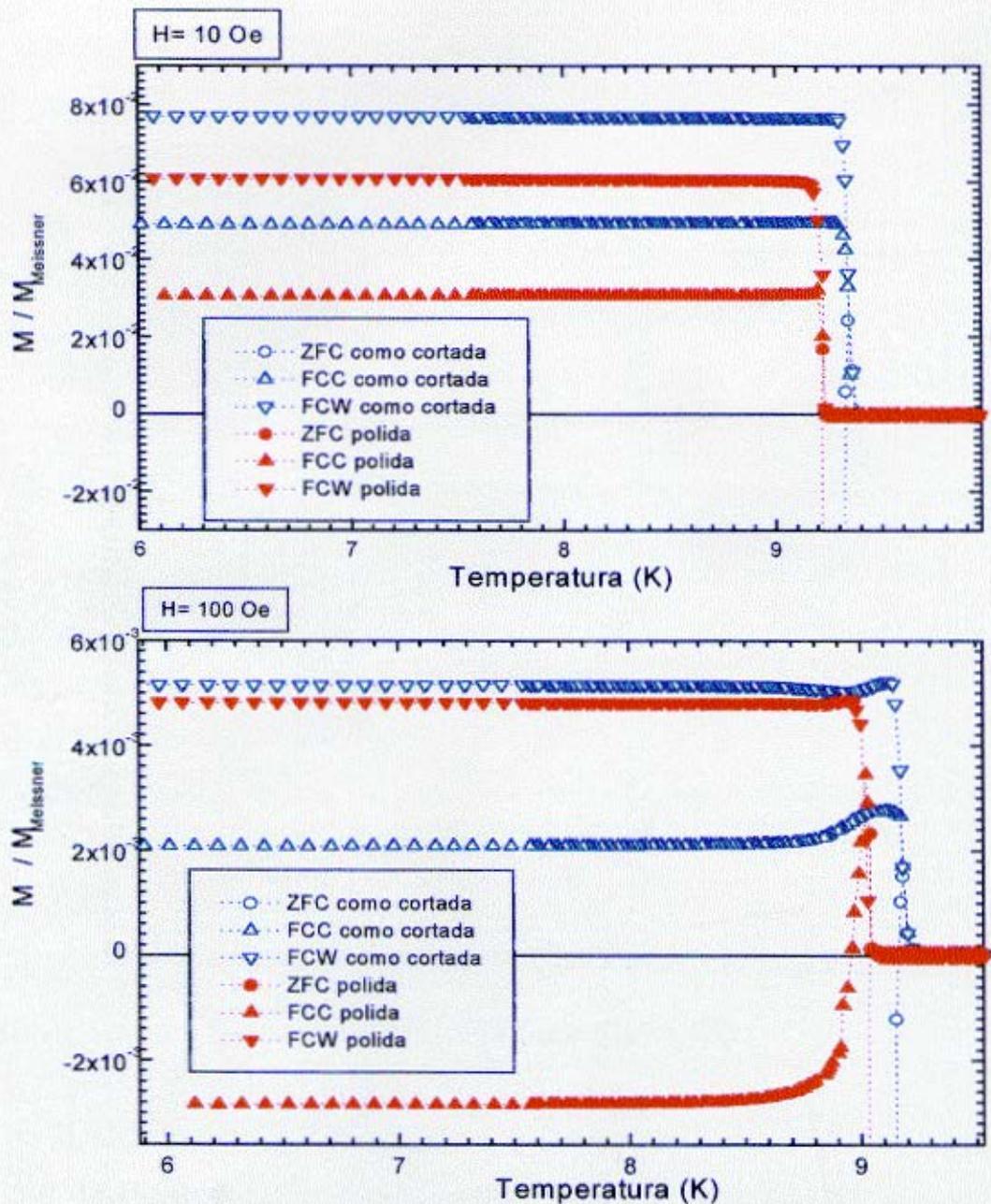


Figura 4-8: Gráficos da magnetização pela temperatura reduzida para anel policristalino, com campo magnético aplicado perpendicularmente ao plano do anel.

H= 300 Oe

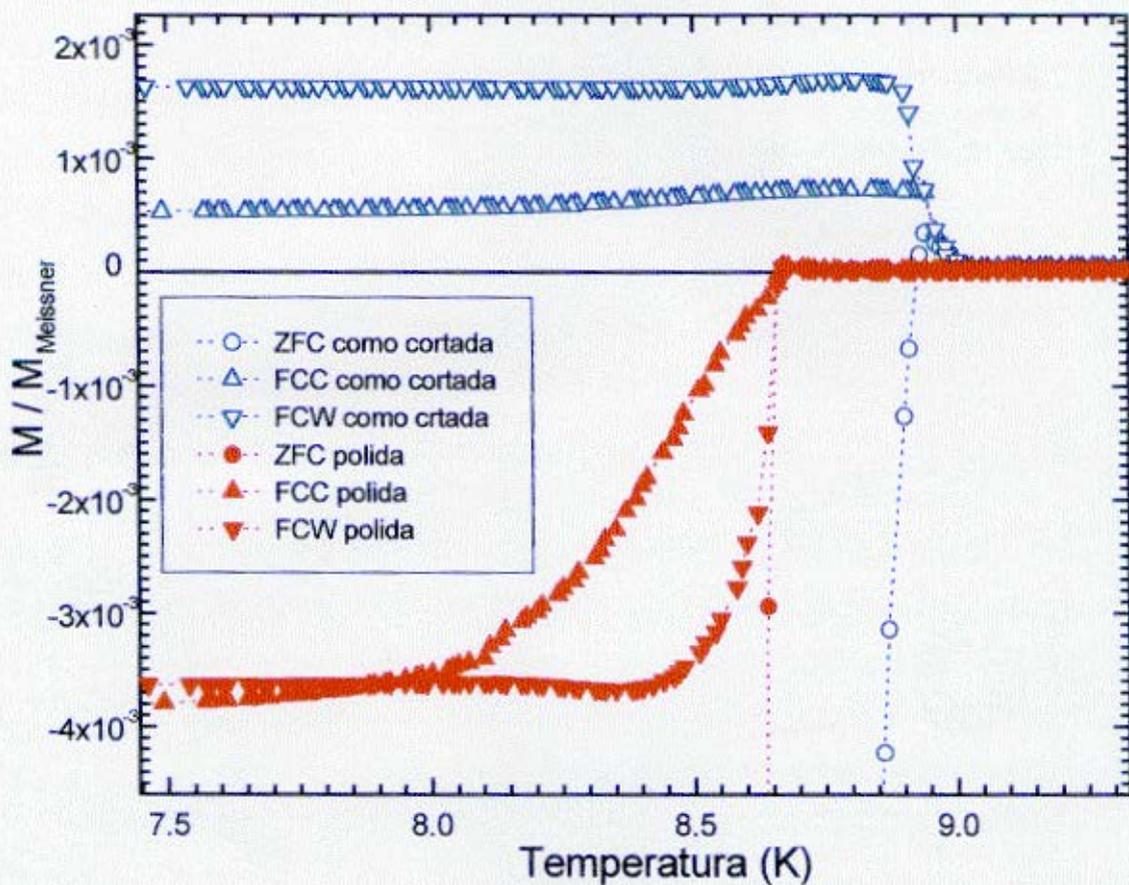


Figura 4-9: Ampliação de gráfico da magnetização em função da temperatura para $H = 300$ Oe. Observem que para a amostra polida não se observa momento paramagnético.

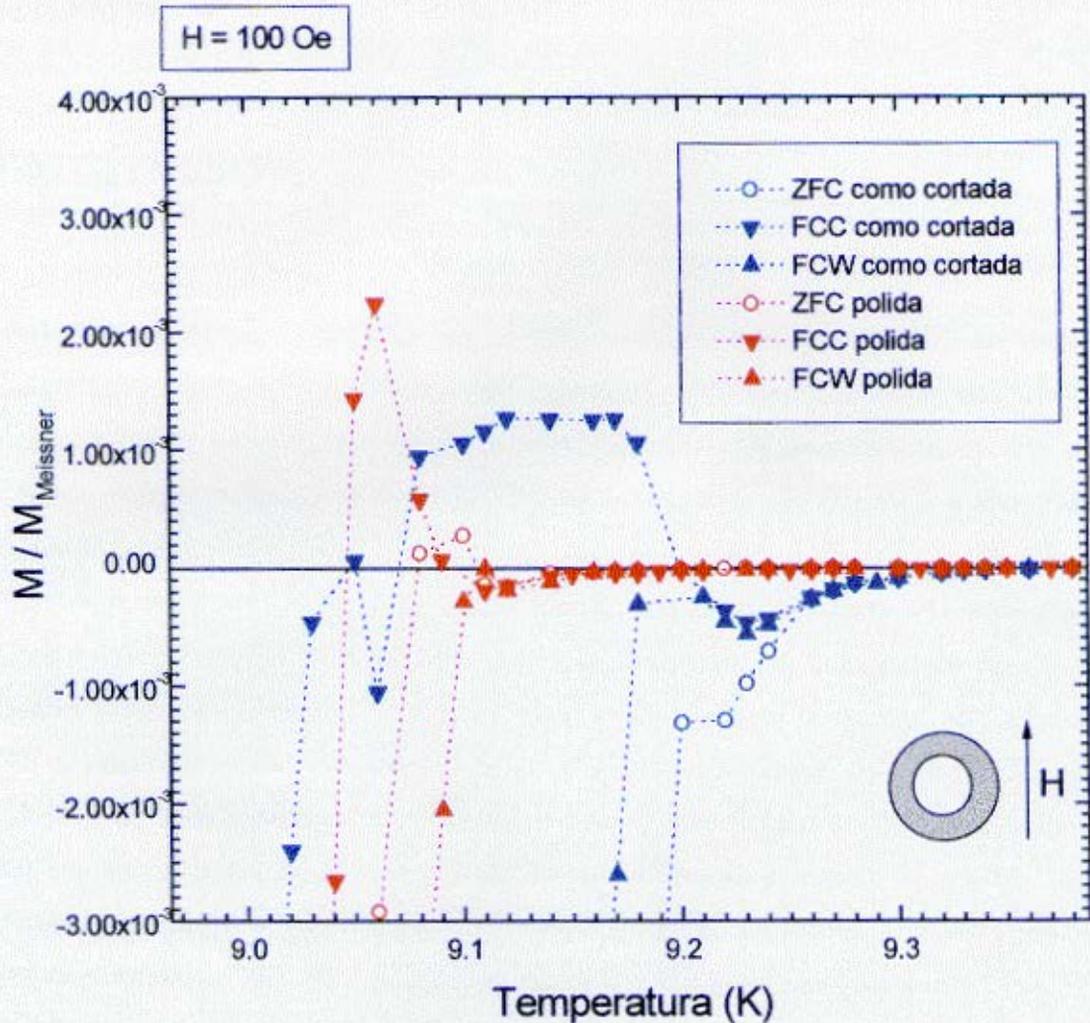


Figura 4-10: Ampliação da curva da magnetização, normalizada pelo sinal Meissner total, em função da temperatura para $H = 100 \text{ Oe}$ para o campo aplicado paralelamente a face da amostra.

Capítulo 5

Conclusão

Neste trabalho estudamos a influência da superfície em medidas de magnetização em amostras de nióbio. Para realçarmos o efeito da barreira superficial, comparamos medidas para diferentes estados da superfície. Observamos, entretanto, que o lixamento da superfície da amostra gerou uma camada superficial de material danificado com κ mais alto, que dificultou a identificação dos efeitos da barreira superficial.

As medidas de relaxação magnética apresentaram uma assimetria entre a taxa de entrada e saída de fluxo do material, especialmente para altas temperaturas. O lixamento da superfície da amostra provocou uma redução sensível desta assimetria para os campos aplicados mais altos ($H = 1600$ Oe), mas não verificamos o mesmo efeito para campos mais baixos ($H < 1200$ Oe). A redução da assimetria com o lixamento está de acordo com a idéia de supressão da barreira superficial com a degradação da superfície. Utilizando o modelo de Anderson-Kim, determinamos a energia de ativação tanto para entrada quanto para saída de fluxo. Obtivemos assim valores da ordem de 1 eV, condizentes com o que é relatado na literatura. Verificamos que a energia de ativação é fortemente assimétrica tanto para a amostra polida quanto para a amostra lixada. O fato da assimetria da energia de ativação não ser praticamente afetada pelo lixamento para campos aplicados baixos, assim como sua supressão apenas parcial para campos altos, sugere a possibilidade da existência de mecanismos de aprisionamento volumétricos que sejam assimétricos quanto a entrada e saída de fluxo.

As medidas de magnetização em função do campo aplicado, no entanto, não apresentam outras assinaturas características de barreira superficial, tais como $m = 0$ para o ramo descen-

dente da curva $M \times H$ ou uma redução de H_p (campo de primeira penetração de vórtices) com o lixamento. O valor de $\kappa = 2.2$ (obtido para a barra monocristalina polida) indica a presença de aprisionamento volumétrico, o que poderia mascarar os efeitos da barreira superficial. Observamos ainda um aumento de H_{c2} com o lixamento (em ambas as amostras estudadas, H_{c2} era tanto maior quanto mais degradada a superfície). Concluimos assim que o lixamento da superfície da amostra gerou uma camada superficial de material danificado que apresenta um κ mais alto, assim como maior densidade de centros de aprisionamento, do que o material do interior da amostra. Esta casca se tornaria supercondutora a campos mais altos (para uma mesma temperatura) que o interior da amostra, daí o aumento de H_{c2} com o lixamento. Concluimos então que as diferenças observadas, em medidas semelhantes, feitas para diferentes estados da superfície da amostra devem ser causadas pela soma dos efeitos associados à barreira superficial e à casca de alto κ .

As medidas da magnetização em função da temperatura apresentaram uma grande retenção de fluxo, o que reforça a idéia de forte aprisionamento volumétrico. Observamos ainda a existência de um pequeno máximo paramagnético próximo da transição supercondutora. Concluimos que o aparecimento deste máximo paramagnético está associado à compressão de fluxo no interior da amostra, devido a presença da casca de alto κ . Verificamos que a intensidade relativa do sinal paramagnético, frente ao sinal Meissner total, diminui conforme aumentamos o campo aplicado. Desta forma, acreditamos ser possível correlacionar os resultados que obtivemos, para campos aplicados da ordem de 1000 Oe , com observações de momento paramagnético relatadas na literatura, sempre feitas para $H < 5 Oe$, para materiais tanto de alta quanto de baixa T_c .

Referências

- [1] A. A. Abrikosov. *Soviet Phys. JETP*, page 1174, 1957.
- [2] P. W. Anderson and Y. B. Kim. Hard superconductivity: Theory of the motion of Abrikosov flux lines. *Rev. Mod. Phys.*, (36):39, 1964.
- [3] M. A. Avila. Efeitos da superfície em materiais supercondutores. Tese de mestrado, UNICAMP, 1996.
- [4] C. P. Bean. Magnetization of hard superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 8(6):250, 1962.
- [5] C. P. Bean and J. D. Livingston. Surface barrier in type-II superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 12(1):14, 1964.
- [6] M. R. Beasley, R. Labusch, and W. W. Webb. Flux creep in type-II superconductors. *Phys. rev.*, 181(2):682, 1969.
- [7] G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur. *Rev. Mod. Phys.*, 66(4):1125, 1994.
- [8] F. J. Blunt, A. R. Perry, A. M. Campbell, and R. S. Liu. *Physica C*, (175):539, 1991.
- [9] E. H. Brandt. Flux line lattice in high- T_c superconductors: anisotropy, elasticity, fluctuation, thermal deppining, AC penetration and susceptibility. *Physica C*, (195):1, 1992.
- [10] W. Braunisch, N. Knauf, G. Bauer, A. Kock, A. Becker, B. Freitag, A. Grütz, V. Kataev, S. Neuhausen, B. Roden, D. Khomskii, and D. Wohlleben. Paramagnetic Meissner Effect in high-temperature superconductor. *Phys. Rev. B*, 48(6):4030, 1993.

- [11] L. N. Bulaevskii, V. V. Kuzii, and A. A. Sobyanin. Superconducting system with weak coupling to the current in the ground state. *JETP Lett.*, 25(7):290, 1977.
- [12] L. Burlachkov. Magnetic relaxation over the Bean-Livingston surface barrier. *Phys. Rev. B*, 47(13):8056, 1993.
- [13] A. M. Campbell and J. E. Evetts. Flux vortices and transport currents in type II superconductors. *Advances in Physics*, 21(90):199, 1972.
- [14] J. R. Clem. A model for flux pinning in superconductors. In K. D. Timmerhaus, W. J. O'Sullivan, and E. F. Hammel, editors, *Proceedings of the 13th Conference on Low Temperature Physics (LT 13)*, volume 3, page 102. 1972.
- [15] M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, and V. M. Vinokur. Flux creep and current relaxation in high- T_c superconductors. *Phys. Rev. B*, 43(7):6263, 1991.
- [16] A. Gurevich and H. K pfer. Time scales of the flux creep in superconductors. *Phys. Rev. B*, 48(9):6477, 1993.
- [17] C. W. Hagen and R. Griessen. In A. Narlikar, editor, *Studies of High Temperature Superconductors*, volume 3, page 159. Nova Science Publishers, 1989.
- [18] R. P. Huebener. *Magnetic Flux Structures in Superconductors*, volume 6 of *Springer Series in Solid-State Sciences*. Springer-Verlag, 1979.
- [19] Y. Kopelevich, V. V. Makarov, and S. Moehlecke. Disorder induced asymmetric magnetization in $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10}$. preprint, 1996.
- [20] Y. Kopelevich and S. Moehlecke. Long time temperature drift in commercial SQUID magnetometer. *Physica C*, 253(3-4):325, 1995.
- [21] A. E. Koshelev. Thermally activated penetration of magnetic flux through a surface barrier in high- T_c superconductors. *Physica C*, (191):219, 1992.
- [22] A. E. Koshelev and A. I. Larkin. Paramagnetic moment in field-cooled superconducting plates: Paramagnetic Meissner effect. *Phys. Rev. B*, 52(18):13559, 1995.

- [23] P. Kostić, B. Veal, A. P. Paulikas, U. Welp, V. R. Todt, C. Gu, J. M. Williams, K. D. Carlson, and R. A. Klemm. Paramagnetic Meissner Effect in Nb. *Phys. Rev. B*, 53(2):791, 1996.
- [24] F. V. Kusmartsev. Destruction of the Meissner Effect in granular high-temperature superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 69(15):2268, 1992.
- [25] W. M. Lee, Y. T. Huang, S. W. Lu, K. Chen, and P. T. Wu. *Solid State Commun.*, (74):97, 1990.
- [26] V. V. Moshchalkov, X. G. Qiu, and V. Bruyndoncx. The Paramagnetic Meissner Effect from the self consistent solution of the Ginzburg-Landau equations. preprint, 1996.
- [27] R. D. Parks, editor. *Superconductivity*. Marcel Dekker, Inc., 1969.
- [28] G. Petzow. *Metallographic Etching*. American Society for Metals, 1978.
- [29] Quantum Design Inc, San Diego, CA, USA. *MPMS System Manual*, 1990.
- [30] S. Riedling, G. Bräuchle, R. Lucht, K. Röhberg, H. V. Löhneysen, H. Claus, A. Erb, and G. Müller-Vogt. Observation of the Wohlleben effect in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals. *Phys. Rev. B*, 49(18):13283, 1994.
- [31] A. C. Rose-Innes and E. H. Rhoderick. *Introduction to superconductivity*. Pergamon Press, 1978.
- [32] M. Sigrist and T. M. Rice. Paramagnetic effect in high T_c superconductors - a hint for d -wave superconductivity. *J. Phys. Soc. Jpn*, 61(12):4283, 1992.
- [33] Y. R. Sun, J. R. Thompson, D. K. Christen, J. G. Ossandon, Y. J. Chen, and A. Goyal. Effects of field-sweep rate on the magnetization of melt-textured $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 46(13):8480, 1992.
- [34] F. F. Ternovskii and L. N. Shekhata. Structure of the mixed state near the boundary of a semi-infinite type II superconductor of the second kind. *Soviet Physics JETP*, 35(6):1202, 1972.

- [35] D. J. Thompson, M. S. M. Minhaj, L. E. Wenger, and J. T. Chen. Observation of Paramagnetic Meissner Effect in niobium disks. *Phys. Rev. Lett.*, 75(3):529, 1995.
- [36] J. R. Thompson, Y. R. Sun, and F. Holtzberg. Long-term nonlogarithmic magnetic relaxation in single-crystal $YBa_2Cu_3O_7$. *Phys. Rev. B*, 44(1):458, 1991.
- [37] M. Tinkham. *Introduction to Superconductivity*. Krieger Publishing Company, 1975.
- [38] A. G. V. Vijfeijken. *Phys. Lett.*, (16):23, 1965.
- [39] Y. Yeshurun, A. P. Malozemoff, and A. Shaulov. Magnetic relaxation in high-temperature superconductors. *Rev. of Mod. Phys.*, 68(3):1, 1996.