

Contractor: INCDFM
Cod fiscal : RO9068280

anexa la procesul verbal de avizare interna nr.

De acord,
DIRECTOR GENERAL
Dr. Ionut Enculescu

Avizat,
DIRECTOR DE PROGRAM
Dr. Lucian Pintilie

RAPORT DE ACTIVITATE AL FAZEI

Contractul nr.: 10N/10.03.2016

Proiectul PN16480101: Fenomene si procese fizico-chimice in sisteme nanometrice complexe, suprafete si interfete

Faza nr. 3 : Modificarea parametrilor critici in supraconductori iradiati cu protoni

Termen: 15.06.2016

1. Obiectivul proiectului:

Prezentul proiect isi propune sa desfasoare studii aprofundate privind fenomenele fizico-chimice care au loc in sisteme nanometrice complexe, pe suprafete sau la interfete, cu focalizare pe materiale functionale care au potential aplicativ in domenii industriale de inalta tehnologie, energetica, spatiu si securitate, protectia mediului si prevenirea poluarii, precum si in stiintele vietii.

2. Rezultate preconizate pentru atingerea obiectivului:

Principale tinte pe care ne propunem sa le atingem prin implementarea proiectului :

- intelegerea proceselor fizice in materiale si structurile lor, prin modelare si prin studiul proprietatilor feroelectrice, magnetice, optice si fotoelectrice ale acestora; in acelasi scop ne propunem sa studiem rolul structurii cristaline, efectele de dimensiune, rolul suprafetelor/interfetelor;
- modelarea dinamicii purtatorilor de sarcina in sisteme mezoscopice, in scopul modelarii tranzitiei de la fotoluminescenta la fotocurent si in scopul controlului optic si electric al starilor excitonice si biexcitonice si relevarea unui proces optic neliniar ca rezultat al interactiei exciton-foton;
- investigarea proprietatilor materialelor cuantice cu proprietati topologice particulare;

- studiul proceselor catalitice si fotocatalitice, al transferului de sarcina si al reactiilor chimice, cu aplicatii in materiale pentru energie, biomedicina si protectia mediului.

3. Obiectivul fazei: Iradierea cu particule nucleare este de natura sa modifice proprietatile supraconductorilor prin: *i)* marirea dezordinii cristaline; *ii)* crearea de defecte susceptibile sa devina centri de fixare a liniilor de camp; *iii)* stimularea imprastierii interbanda a purtatorilor de sarcina. Aceste trei procese sunt de interes aplicativ in masura in care bilantul proceselor mentionate conduce la imbunatatirea proprietatilor de transport in cabluri supraconductoare. Cercetarea se va focaliza, fara a ne limita, asupra iradierii cu protoni a MgB_2 . Datorita dimensiunii mici a proiectilului, protonul, ne asteptam la efecte relativ minore asupra proprietatilor supraconductoare dar la efecte semnificative asupra proceselor de pinning.

4. Rezultate preconizate pentru atingerea obiectivului fazei:

Caracteristicile de pinning ale MgB_2 iradiat cu protoni. Ddependentă de temperatura si de campul aplicat.

5. Rezumatul fazei: (*maxim 5 pagini*)

Transportul curentului in supraconductorii este legat de formarea de centri de ancorare a vortexurilor care sa impiedice miscarea lor. In cursa pentru crearea de centri de fixare artificiali a fost folosita cu succes iradierea cu particule nucleare mai ales in cazul supraconductorilor cu temperatura critica ridicata. Iradierea cu particule nucleare genereaza vacante si interstitiali (perechi Frenkel-PF) peste valorile de echilibru atat in subreteaua borului cat si a magneziului. Desi PF au tendinta permanenta de a se recombina sau agregă, tendinta facilitata si de agitatie termica, in final ajung sa creeze structuri de dislocatii. In general cinetica vacantelor si interstitialilor nu este identica. Astfel, nucleatia buclelor de interstitiali va fi urmata de absorbtia altor interstitiali. Aparitia acestor centri de acumulare de interstitiali favorizeaza nucleatia buclelor de vacante. Aceste defecte extinse (clusteri, bucle de vacante, dislocatii) si numai ele sunt centrii eficienti de pinning in cazul MgB_2 intrucat acest supraconductor are o lungime de coerenta mare $\xi \sim 10$ nm. Aceste defecte create prin iradiere pot avea influenta asupra proprietatilor electronice si, prin urmare asupra, caracteristicilor supraconductoare. In primul rand micsoreaza lungimea de coerenta si maresc campul critic superior H_{c2} . In al doilea rand cupleaza benzile energetice π si σ prin imprastieri interbanda care micsoreaza gapul supraconductor si temperatura critica T_c .

Exista putine date legate de iradierea cu protoni in literatura si toate sunt legate de iradierea cu protoni de energie mai mica de 6 MeV. In plus rezultatele sunt relativ contradictorii. Din acest motiv in acest studiu ne-am focalizat pe protoni de energie mare, in jur de 10 MeV. Motivul este ca o energie mai mare face ca protonii sa patrunda mai adanc in material. Astfel, probabilitatea de a gasi defecte distribuite uniform este mai mare.

Pentru iradiere s-au folosit probe de MgB_2 sinterizate prin SPS care au o densitate de cca 90% din valoarea ideala. Iradierea s-a facut la IFIN „HH” cu protoni de 14 MeV de la Ciclotronul TR19, folosind degradori de energie, in aranjamentul experimental din Fig. 1.

O proba P1 a fost iradiata cu protoni de energie 13.2 MeV, iar restul au fost iradiate cu protoni de 11.3 MeV la diferite fluente. Datele de iradiere sunt prezentate in tabelul 1.

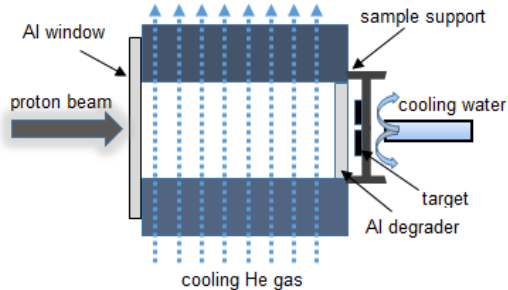


Figura 1. Aranjamentul de iradiere cu protoni

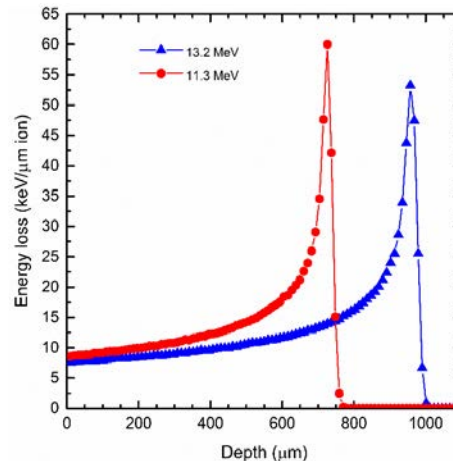


Figura 2. Pierdera de energie in volumul probei de MgB₂

.Similarile folosind codul SRIM pentru adancimea de patrundere a protonilor arata o patrundere de 730 nm pentru protonii de 11.3 MeV si de 960 nm pentru cei de 13.2 MeV (Fig. 2). In ambele cazuri, practic intreg volumul este iradiat.

Tabelul 1. Date de iradiere

Proba	grosime degradori (μm)	energie protoni (MeV)	timp de iradiere (sec)	Energie la tinta at target (MeV)	Sarcina la tinta (μA sec)	Φ p cm ⁻²
P0	0	0	0	0	0	0
P1	50+50	14	1702	13.2	45085	35.8 · 10 ¹⁶
P2	50+300	14	1472	11.3	48222	38.3 · 10 ¹⁶
P3	50+300	14	720	11.3	4464	3.5 · 10 ¹⁶
P4	50+300	14	3956	11.3	4284	3.4 · 10 ¹⁶

1. Magnetizare

Figura 3 prezinta dependenta susceptibilitatii magnetice χ de temperatura T pentru proba iradiata si cea neiradiata. Temperatura critica este doar marginal influentata de iradiere, de exemplu, la proba iradiata cu cei mai energetici protoni, P1, variatia este $\Delta T_c = -0.6$ K. fapt care sugereaza ca perechile Frenkel formate nu duc la imprastieri intre benzi. Acest lucru confirma calculele care arata ca golurile din banda σ raman delocalizate deci T_c nu este influentat [1]. In ciuda acestei scaderi minore a T_c , semnalul diamagnetic, care reflecta fractia de volum supraconductor, scade cu mai mult de 20% la aceeasi proba. Acest fapt este compatibil cu o separare microscopica in zone supraconductoare si nesupraconductoare [1, 2]. Aceeasi proba prezinta atat cea mai redusa ecranare supraconductoare cat si cea mai redusa fractie Meissner f_M (vezi insetul la Fig. 3). Fractia Meissner este o masura a pinningului vortexurilor si s-a demonstrat ca ea scade odata cu cresterea parametrului de pinning $\gamma_{c1} \sim \frac{J_c(T_{c1})L}{H_{c1}(T_{c1})}$ [3]. Aici, J_c este densitatea critica de curent, L dimensiunea probei, H_{c1} campul critic inferior, si T_{c1} temperatura la care campul aplicat H este egal cu H_{c1} . Dupa cum arata Insetul la Figura 3, fractia Meissner scade la toate probele iradiate Astfel scaderea f_M este de 67, 65, 55 si, respectiv, 29 % pentru probele P1, P2,

P3 si P4. Scaderea consistenta a f_M inseamna cresterea γ_c fapt care presupune o crestere substantiala a J_c .

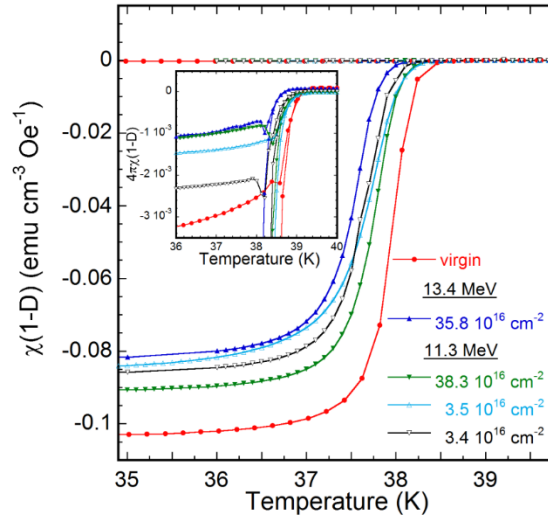


Figura 3. Dependenta susceptibilitatii magnetice de temperatura pentru probele de MgB₂ (virgina si iradiate). Inset: fractia Meissner fraction pentru aceleasi probe.

Comparatia f_M , si deci a J_c , arata o dependenta puternica de fluenta protonilor si mai putin de energie. Totusi energia este importanta in reducerea ecranarii supraconductoare. Aceasta este redusa cu 21% la 13.2 MeV fata de 12% la 11.3 MeV la fluente aproape identice. Este interesant ca la aceeasi energie, fluenta de 38.3 p cm⁻² (proba P2) genereaza o scadere mai mica a ecranarii supraconductoare decat fluentele mai mici, 3.5 10¹⁶ si 3.4 10¹⁶ p cm⁻² (probele P3 si P4.). Rezultatul pare sa fie in contradictie cu fractia Meissner. In fapt, calculele numerice arata ca la fluente mari distributia sapatiala omogena a defectelor create devine instabila [4-6] in sensul ca defectele incep sa se concentreaza in anumite zone lasand alte zone libere de defecte. Astfel, materialul va prezenta regiuni cu densitate mare de defecte unde supraconductia este aproape suprimata dar care asigura un pinning eficient si regiuni unde defectele aproape lipsesc dar care furnizeaza o buna ecranare supraconductoare.

2) Pinningul si densitatea critica de curent

Magnetizarea probelor iradiate in functie de campul magnetic arata o crestere consistenta a instabilitatilor magnetice reflectate in salturi de flux care persista pana la temperaturi mai mari de 20 K. In probele neiradiate acest depinning catastrofal se manifesta doar in jurul temperaturii heliului lichid. In literatura, discutia asupra acestui efect incomod in probele iradiate este aproape evitata in probele iradiate cu protoni (doar o singura referinta [7]). Amplitudinea salturilor scade cu cresterea fluentei dar apar la acelasi camp pentru o fluenta data. (Fig. 4a) in timp ce cresterea de energie deplaseaza campul la care apare saltul spre valori mai mari (Inset la Fig. 4a). Aceste salturi sunt generate cand difuzia fluxului in proba este mai mare decat a caldurii

$D_m \gg D_t$ [8] (conditia de adiabaticitate). Difuzivitatea termica depinde de conductivitatea termica κ si capacitatea calorica C , $D_t = \kappa/C$ iar cea magnetica de conductivitatea de curgere a fluxului (flux flow) σ_{ff} , $D_m = \left(\frac{c^2 c}{4\pi}\right) \sigma_{ff}^{-1} = \rho_n \frac{B}{H c^2}$ unde ρ_n is the rezistivitatea in stare normala. Iradierea este o sursa de dezordine care mareste ρ_n si micsoreaza κ [9-12] deci campuri mai mici vor satisface conditia de salt. Modul in care iradierea cu protoni modifica domeniile de instabilitate in regim ZFC este prezentat in diagrama din Fig. 4b in diagrama $T-H$. In aceasta diagrama, propusa de Chabanenko *et al.* [30], fiecare salt este reprezentat de un punct. Mentionam ca salturile pot fi evitate daca incarcarea campului se face suficient de lent. Intr-advar, in regim de creep, caracteristica current tensiune este puternic neliniara si σ_{ff} trebuie inlocuita cu rezistivitatea diferentiala $\sigma \sim J_c \left(\frac{dB}{dt}\right)^{-1}$ [13] care este foarte mare la incarcare lenta si conditia de adiabaticitate nu mai este valabila.

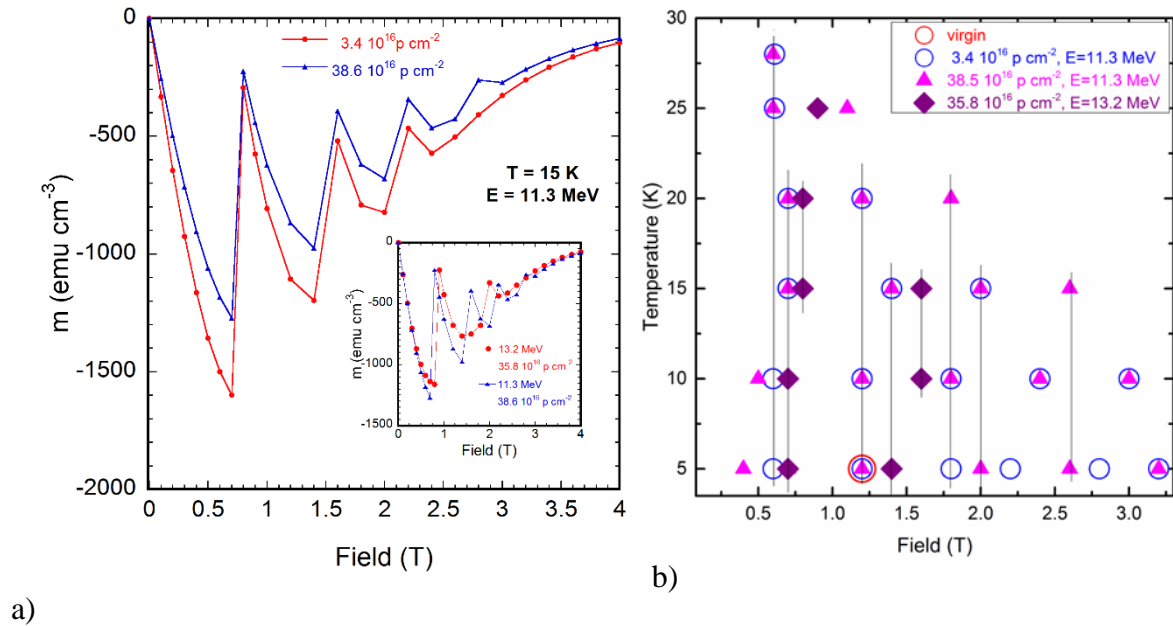


Figura 4. a) Salturile de flux in probele iradiate la diferite fluente de protoni de 11.3 MeV la 15 K. Inset: Evolutia salturilor de flux pentru probe iradiate la 11.3 si 13. 2 MeV, la fluente de $3.4 \cdot 10^{16}$ si $38.6 \cdot 10^{16}$ p cm⁻². b) Diagrama de faza $T-H$ in regim ZFC (primul cuadrant).

Din cauza instabilitatilor magnetice, J_c poate fi analizat doar in acele conditii de camp si temperatura in care nu exista instabilitatile magnetice. Dependenta de camp a J_c este prezentata in Fig. 5 la 10, 20 si 30 K pentru fiecare proba iradiata, pentru proba virgina si pentru o proba virgina dopata cu BN cubic luata din Ref 14. Dupa cum arata Fig. 5 efectul iradierii este evident in toate probele. De exemplu, la 10 K si 5 T proba virgina are o densitate critica de current de $2.9 \cdot 10^3$ A cm⁻² in timp ce pentru proba P1 valoarea este de $18.6 \cdot 10^3$ A cm⁻². In toate cazurile, J_c respecta o lege ce aminteste de pinningul pe fascicule mici de flux [15]:

$$J_c = J_{c0} \exp \left[- \left(\frac{H}{H_D} \right)^{3/2} \right], \quad (1)$$

Campul de scalare H_D este legat de energia de pinning colectiv U_c , adica $H_D \sim U_c^2$ [15]. O dependenta similara este valabila si pentru proba virgina doar pentru $T \geq 25$ K, si cu exponentul $\eta = 3/2$ inlocuit cu $\eta = 2$ in Eq. (1). In fapt aceasta crestere a exponentului reflecta influenta depinningului termic la temperaturi mari. In dependenta campului H_D de T (Fig. 6), diferentele intre probele iradiate si proba virgina sunt evidente.

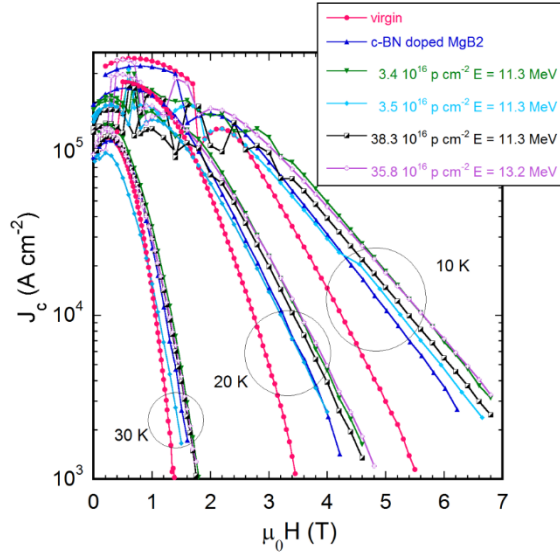


Figura 5. Dependenta densitatii critice de curent J_c de campul aplicat B pentru probele virgina, dopata cu c-BN si iradiate cu protoni de MgB_2 policristalin masurate la 10, 20 si 30 K.

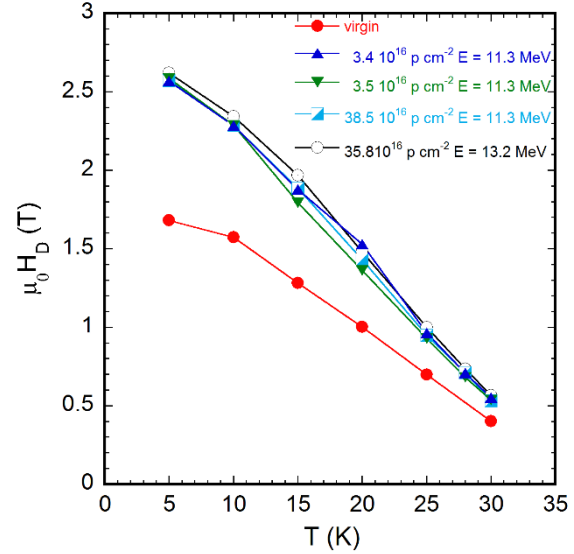


Figura 6. Dependenta campului de scalare H_D de temperatura pentru MgB_2 virgina si iradiat cu protoni.

3) Magnetic relaxation.

Datele de relaxare magnetica, furnizeaza energia de activare a creepului $U^*(J,T)$ mediata pe fereastra de timp t_w , $U^*(J,T) = -T \ln(t)/\ln(|m|)$ [16, 17]. Dependenta de temperatura a U^* este prezentata in Fig. 7 pentru $\mu_0 H = 3$ si, respectiv 5 T, pentru trei tipuri de probe policristaline: MgB_2 virgina, MgB_2 dopat cu c-BN si MgB_2 iradiat cu protoni la $38.5 \cdot 10^{16} \text{ p cm}^{-2}$. La campuri $\mu_0 H < 3$ T si temperaturi joase datele sunt afectate puternic de instabilitati magnetice dar in ambele cazuri prezentate U^* este mai mare decat in cazul probelor neiradiate, iar la $\mu_0 H = 5$ T datele pe proba virgina sunt deja in zona zgomotului si nu pot fi folosite. La $\mu_0 H = 3$ T probele iradiate arata o crestere anormala a U^* intre 11 si 13 K. Aceasta discontinuitate indica o scadere rapida a densitatii de curent J pentru ca, in acord cu Ref. 18, avem:

$$U^*(J) = U_c \left(\frac{J_c}{J} \right)^p, \quad (2)$$

unde U_c este energia caracteristica de pinning iar p exponentul de creep. Exponentul de creep p este pozitiv pentru creep-ul elastic ($p \cong \mu$ in Ref. 15) si negativ pentru creepul mediat de dislocatii (plastic). Deci la $\mu_0 H = 3$ T, sistemul este deja in regim de creep plastic ($p < 0$) pentru $T > 6$ K in timp ce pentru $\mu_0 H = 5$ T sunt vizibile ambele regimuri si se pot compara energiile caracteristice U_c , care corespund maximului energiei $U^*(T)$ (unde $p = 0$). Astfel, $U_c \approx 470$ K for pentru probele iradiate si $U_c \approx 450$ K pentru proba dopata cu c-BN.

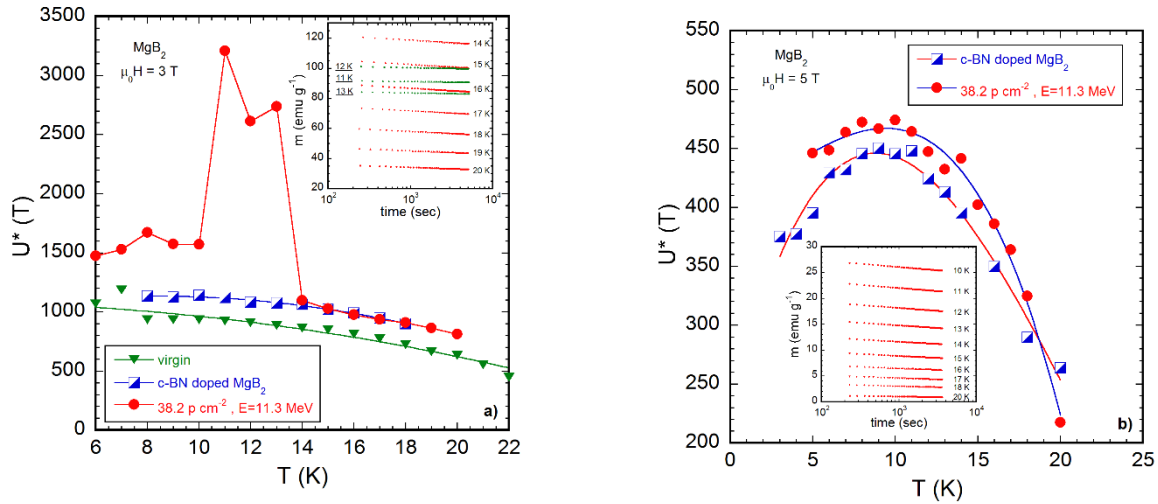


Figura 7. Dependenta de temperature a energiei de activare a creep-ului U^* la diferite campuri magnetice. a) $\mu_0 H = 3$ T; b) $\mu_0 H = 5$ T. Inseturi: dependenta de timp a magnetizarii la 3 T (stanga) si la 5 T (dreapta).

Cum modelul de pinning slab, asa cum este definit in Ref. 15, nu este valabil in cazul MgB_2 , atribuim cresterea densitatii de curent formarii de defecte mai complexe precum clusterii, buclele de vacante si dislocatiile care sunt efective pentru reseaua liniilor de flux. Imbunatatirea pinningului prin iradiere cu protoni poate fi o metoda de interes, pentru dezvoltarea aplicatiilor in medii cu flux de protoni mai ales ca elementele constitutive nu prezinta o activare mare si de durata.

Bibliografie

1. N. D. Zhigadlo et al., Phys. Rev B 81, 054520 (2010)
2. P. A. Sharma et al., Phys. Rev. Lett. **89**, (2002) 167003
3. J. R. Clem, Z. Hao, Phys. Rev. B 48 (1993) 13774
4. S. M. Murphy, Europhys. Lett., 3 1267 (1987)
5. D. Walgraef, J. Lauzeral, N. M. Ghoniem, Phys. Rev B 53 (1996) 14782
6. A. Durán et al., J. Appl. Phys 104, 093917 (2008)
7. A. A. Semenov, C. H. Woo, Phys. Rev B **71**, 054109 (2005)
8. V. Chabanenko et al., J. Low Temp. Phys. **130** (2003) 175
9. A. V. Sologubenko et al., Phys. Rev. B 71, 020501(R) (2005)
10. A. V. Sologubenko et al., Phys. Rev. B 74 (2006) 184523
11. E A Young, A Kulak, Y Yang Supercond. Sci. Technol. 24 (2011) 085015
12. D. Tripathi, T. K. Dey, J. Supercond. Nov. Magn. 27 (2014) 2011
13. N. A. Taylanov, arXiv:1111.0401 [cond-mat.supr-con]
14. A.M. Ionescu et al., Mater. Chem. Phys. 170 (2016) 201
15. G. Blatter et al., Rev. Mod. Phys. **66** (1994) 1125
16. Y. Yeshurun, A. P. Malozemoff, A. Shaulov, Rev. Mod. Phys. 68 (1996) 911
17. L. Miu, D. Miu, Supercond. Sci. Technol. 23 (2010) 0250333
18. L. Miu et al., Physica C 468 (2008) 2279

Rezultate, stadiul realizării obiectivului fazei, concluzii și propuneri pentru continuarea proiectului

1. S-a trimis la publica la **Physica C** lucrarea: *Superconductivity in MgB₂ Irradiated with Energetic Protons*, autori: V. Sandu, L. Craciun, Alina M. Ionescu, G. Aldica, L. Miu and A. Kuncser
2. S-a prezentat lucrarea *Layering and Defect Formation in Proton Irradiation MgB₂* autor V. Sandu la International MultiSuper Workshop “Novel Quantum Phenomena in Ultra Thin Superconductors”, University of Camerino, Italy, 7-8 April 2016

Propunem continuarea studiilor pentru a determina dependenta densitatii critice de curent si a energiei de activare de energia protonilor intr-un domeniu mai extins de energii.

Responsabil proiect

Dr. Sorina Lazanu

Responsabil faza

Dr.V.Sandu

Dr.I.Ivan

Alina Ionescu