

Estudo de Materiais Pela Técnica de Suscetibilidade Magnética AC

C. C. de Faria^{1,2}, A. J. A. de Oliveira¹ e W. A. Ortiz¹

¹ Grupo de Supercondutividade e Magnetismo,

Departamento de Física

Universidade Federal de São Carlos

CP 676, 13.565-905 - São Carlos, SP - Brasil

² Colégio Militar de Brasília - Brasília, DF - Brasil

Recebido em 15 de Janeiro, 2000. Aceito em 25 de Agosto, 2000

No presente trabalho apresenta-se uma breve discussão sobre o conceito de suscetibilidade magnética AC e a sua interpretação para materiais que apresentam condutividade apreciável. São demonstradas as equações do campo magnético no interior de um cilindro que permitem calcular as componentes da suscetibilidade magnética e a condutividade elétrica, a partir dos resultados obtidos experimentalmente.

In this work we briefly discuss the concept of magnetic AC susceptibility and its interpretation in the case of materials exhibiting appreciable conductivity. Equations for the magnetic field inside a cylindrical sample are developed, allowing for the calculation of real and imaginary components of the complex magnetic AC susceptibility and electrical conductivity in terms of experimental results.

I Introdução

A suscetibilidade magnética (χ) é uma das mais importantes grandezas físicas que podemos medir experimentalmente no que se refere as propriedades físicas de materiais magnéticos. Em particular, sua determinação pode revelar características tais como a ocorrência de transições de fase de natureza variada, ou a existência de estados com ordenamento magnético, com ou sem magnetização resultante. Sistemas que apresentam fases magnéticas, "spin-glass" e supercondutores foram e são intensamente estudados por essa propriedade física.

Uma das maneiras mais simples de se medir χ é através da técnica AC. A sua utilização já remonta a mais de 50 anos, principalmente em materiais isolantes. Contudo a sua aplicação em materiais condutores sempre foi muito restrita, devido ao fato que esta técnica utiliza campos magnéticos alternados e estes induzem correntes de Foucault, dificultando a interpretação de seus resultados.

Uma das vantagens desta técnica é que se obtêm sinais proporcionais a suscetibilidade magnética diferencial e a dissipação de energia no material devido a excitação do campo magnético que, no caso de materiais condutores, está associada a condutividade elétrica (σ).

Para materiais isolantes, nos quais as perdas devi-

das às correntes de Foucault não são significativas, o problema de determinação de (χ) é trivial, restrito essencialmente à sua componente real. Entretanto, para materiais de condutividade apreciável, é necessário separar as contribuições devidas à σ e à χ .

Neste presente artigo apresentamos uma breve revisão do conceito de suscetibilidade magnética e a interpretação de seus resultados obtidos pela técnica AC, principalmente para materiais que têm condutividade apreciável.

II O conceito de suscetibilidade magnética

Na presença de um campo magnético cada material responde de acordo com as propriedades de seus átomos e moléculas individuais bem como das interações entre estes. Essas ditas propriedades magnéticas do material podem ser relacionadas à magnetização M , sendo esta definida como:

$$\vec{M} = \lim_{\Delta V \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta V} \sum_1 \vec{m}_i^e \quad (1)$$

onde ΔV é um pequeno volume e m_i é o momento magnético do átomo de índice i , e a soma se estende a todos os átomos do volume ΔV .

Os vetores campo magnético, indução magnética e magnetização são relacionados por, quando escritos no sistema internacional (SI) por:

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) \quad (2)$$

onde \vec{M} é a indução magnética e \vec{H} é o campo magnético. Entretanto, as relações de \vec{B} e \vec{M} com \vec{H} são dadas por:

$$\vec{B} = \vec{\mu}\vec{H} \quad \vec{M} = \vec{\chi}\vec{H} \quad (3)$$

que combinadas com a equação (2) permitem escrever a relação:

$$\vec{\mu} = \mu_0(1 + \vec{\chi}) \quad (4)$$

sendo $\vec{\mu}$ o tensor permeabilidade magnética e $\vec{\chi}$ o tensor suscetibilidade magnética.

Devemos considerar os efeitos de linearidade e isotropia do material ao definirmos estas grandezas. Para um material isotrópico os tensores permeabilidade e suscetibilidade magnéticas podem ser expressos na forma de um escalar. Entretanto, é importante considerar-se os efeitos de não linearidade da resposta do sistema em estudo à aplicação do campo magnético \vec{H} . Sendo assim, μ e χ devem ser definidas como funções de H . Entretanto, as relações apresentadas na equação (3) podem nos dar a idéia errônea de que μ e χ devam ser escritas como razões entre as grandezas B e H e M e H , respectivamente. Porém, estas razões não representam adequadamente o fenômeno físico, sendo o correto utilizar a permeabilidade e a suscetibilidade diferenciais definidas como:

$$\begin{aligned} \mu &= \mu(H) = \frac{\partial B}{\partial H} \\ \chi &= \chi(H) = \frac{\partial M}{\partial H}. \end{aligned} \quad (5)$$

É interessante considerar H como a superposição de dois campos colineares, $H = H_0 + h$. Escrivendo $B(H)$ como uma série de Taylor em torno de H_0 :

$$\begin{aligned} B(H) &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \left(\frac{\partial^n B}{\partial H^n} \right)_{H_0} (H - H_0)^n \\ &= B_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n!} \left(\frac{\partial^n B}{\partial H^n} \right)_{H_0} (H - H_0)^n \end{aligned} \quad (6)$$

Da definição da permeabilidade diferencial teremos:

$$\mu = \frac{\partial B}{\partial H} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{(n-1)!} \left(\frac{\partial^n B}{\partial H^n} \right)_{H_0} (H - H_0)^{n-1} \quad (7)$$

Para $h \ll H_0$, isto é, $H \geq H_0$, podemos reter apenas o termo de primeira ordem, e:

$$\mu(H_0) = \left(\frac{\partial B}{\partial H} \right)_{H_0} = \left(\frac{\partial B(H_0)}{\partial h} \right)_{h_0} \quad (8)$$

A suscetibilidade magnética diferencial pode ser definida de maneira análoga. Temos então que:

$$\chi(H_0) = \left(\frac{\partial M}{\partial H} \right)_{H_0} = \left(\frac{\partial M(H_0)}{\partial h} \right)_{h_0} \quad (9)$$

Sendo assim, as equações (8) e (9) são válidas para qualquer material, e estas grandezas (μ e χ) podem ser obtidas a partir destas equações desde que a dependência de \vec{B} e \vec{M} em função de \vec{H} seja conhecida.

Um caso interessante é aquele em que h é um campo AC superposto ao campo DC, H_0 . O atraso da magnetização em relação ao campo, que normalmente desconhecemos em problemas estacionários, precisa agora ser considerado. Se o campo aplicado é da forma [1].

$$H(t) = H_0 + h_0 \cos \omega t \quad (10)$$

a magnetização pode, então, ser representada por:

$$\begin{aligned} M(t) &= M_0 + m_0 \cos(\omega t - \phi) \\ &= M_0 + m_0(\cos \omega t \cos \phi + \text{sen} \omega t \text{sen} \phi) \end{aligned} \quad (11)$$

sendo que M_0 é o valor da magnetização para um campo DC H_0 e ϕ representa o atraso \vec{M} de em relação a \vec{H} . Tais equações estão escritas na forma escalar pois consideramos \vec{H}_0 e \vec{h} paralelos.

Entretanto, $\cos \omega t = h/h_0$ e $\text{sen} \omega t = -\frac{1}{\omega h_0} \frac{\partial h}{\partial t}$, ou seja, $M(t)$ tem uma componente em fase com h e outra em fase com $\partial h / \partial t$.

É mais apropriado usar a notação complexa, tal que:

$$\begin{aligned} h(t) &= h_0 e^{-j\omega t} \\ M &= M_0 + m_0 e^{-j(\omega t + \phi)} \\ &= M_0 + \frac{m_0}{h_0} e^{-j\phi} h \end{aligned} \quad (12)$$

e a suscetibilidade magnética diferencial é escrita como:

$$\chi = \frac{\partial M}{\partial H} = \frac{\partial M}{\partial h} = \frac{m_0}{h_0} e^{j\phi} = \chi' + j\chi'' \quad (13)$$

Tanto χ' quanto χ'' dependem da frequência ω bem como da magnitude do campo H_0 , visto que M_0 depende destas grandezas. A dependência de χ' com ω é chamada *dispersão paramagnética*; χ'' , é proporcional à energia absorvida pelo material.

Uma técnica muito utilizada para a determinação de χ' e χ'' é a técnica de suscetometria-AC. Esta consiste da introdução de uma amostra em um campo de prova alternado, \vec{h} , geralmente superposto a um campo DC \vec{H}_0 , campo alternado este que produz uma pequena variação na magnetização da amostra.

A técnica de suscetometria-AC devidamente utilizada, isto é, com $h \rightarrow 0$, satisfaz as definições diferenciais de μ e χ (equações (8) e (9)), e mede exatamente a suscetibilidade magnética diferencial.

III A interpretação dos valores medidos pela técnica de suscetibilidade magnética AC

Utilizando-se um suscetômetro AC, que pode ser construído de diferentes formas [2], este fornece duas tensões de saída V_L e V_R (em fase e defasada em 90° com a corrente de uma bobina excitadora, respectivamente). O problema consiste, então, em relacioná-las com as grandezas físicas de interesse. Para materiais com condutividade elétrica não desprezível, ambas as componentes dependem de χ' , χ'' e σ [3]. Outro fator que deve-se levar em consideração é a geometria da amostra, que é de fundamental importância para a interpretação dos resultados obtidos por essa técnica.

Problemas unidimensionais de esfera e cilindros infinitos tem solução analítica e tem sido utilizada por diversos autores relacionando V_L e V_R .

Para um material isolante a tensão induzida nas bobinas sensoras é diretamente proporcional à suscetibilidade complexa ($\chi = \chi' + j\chi''$) da amostra, sendo V_L relacionada com a parte real da suscetibilidade (χ') e V_R com a parte imaginária (χ''). Entretanto, se o material em estudo for metálico, a interpretação dos resultados é mais complicada, em vista das correntes de Foucault, que decorrem da excitação alternada.

Vamos admitir que a amostra seja um cilindro metálico infinito com seu eixo paralelo à direção de um campo alternado, na forma $\vec{h}(\vec{r}, t) = \vec{h}_0(\vec{r})e^{j\omega t}$ como mostra a Fig. 1. A partir das das equações de Maxwell (no SI), das relações constitutivas e da lei de Ohm, aplicando-se o rotacional na equação:

$$\nabla \times \vec{h} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (14)$$

sendo que consideramos o meio isotrópico e homogêneo e a equação $\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$, obtém-se

$$-\nabla^2 \vec{h} = -\sigma\mu \frac{\partial \vec{h}}{\partial t} - \varepsilon\mu \frac{\partial^2 \vec{h}}{\partial t^2} \quad (15)$$

Como a dependência de \vec{h} com o tempo é dada pelo fator $e^{j\omega t}$ temos que:

$$\nabla^2 \vec{h} - k^2 \vec{h} = 0 \quad (16)$$

na qual $k = (j\omega\mu\sigma - \varepsilon\mu\omega^2)^{1/2}$.

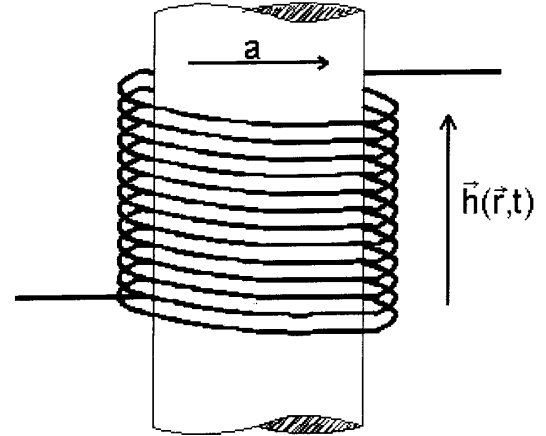


Figura 1. Amostra cilíndrica longa centrada em uma espira circular submetida a um campo magnético axial com excitação senoidal.

Para um cilindro infinito o campo é da $\vec{h} = h_z(r)\hat{z}$ e tem apenas componente axial, sendo independente das variáveis θ e z . Portanto a equação (16) fica na forma:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial h_z}{\partial r} \right) - k^2 h_z = 0 \quad (17)$$

que é a Equação de Bessel Modificada, cuja solução geral é

$$h_z = A'I_0(kr) + B'K_0(kr) \quad (18)$$

onde A' e B' são constantes a serem determinadas pelas condições de contorno e $I_0(kr)$ e $K_0(kr)$ são funções de Bessel modificadas de ordem zero.

Para o interior da amostra, na aproximação quasi-estática, ou seja, no limite de baixas frequências, temos que $\sigma\mu\omega \gg \varepsilon\mu\omega^2$, de modo que $k_i^2 = j\sigma\mu\omega$. Como em $r = 0$ a função $K_0(kr)$ diverge, temos $B' = 0$. A condição de continuidade do campo tangencial na interface permite obter a constante A' :

$$A' = \frac{h_a}{I_0(k_i a)} \quad (19)$$

Então, a solução radial para o campo magnético no interior de uma amostra cilíndrica longa, que está centrada em uma espira circular e submetida a um campo axial de excitação senoidal, como mostra a Fig. 1 é dada por:

$$h(r, t) = h_a \frac{I_0(kr)}{I_0(ka)} e^{j\omega t} \quad (20)$$

na qual h_a é o campo na superfície da amostra.

Sabemos que a tensão induzida na espira é devida à variação do fluxo da componente do campo perpendicular ao plano da espira (Lei de Faraday). Temos então que se a espira sensora está no plano xy e o campo está na direção z , integrando as contribuições desde o centro da amostra até a superfície ($r = a$) e derivando em relação ao tempo obtemos a tensão induzida pela amostra na espira. Esta tensão é dada por:

$$v = -\mu \frac{\partial}{\partial t} \left(\int_0^a \vec{h}(r, t) \cdot d\vec{s} \right)$$

$$= -j2\pi a\omega\mu h_a \frac{I_1(ka)}{kI_0(ka)} \quad (21)$$

$I_1(ka)$ sendo a função de Bessel modificada de primeira ordem. No regime de baixas frequências, isto é, completa penetração do campo eletromagnético ($ka \ll 1$), as séries infinitas que representam estas funções convergem rapidamente. Retendo até primeira ordem em σ , tem-se:

$$\frac{I_1(ka)}{kI_0(ka)} = \frac{1}{2}a - \frac{1}{16}k^2a^3 = \frac{1}{2}a - \frac{1}{16}(j\omega\mu\sigma)a^3 \quad (22)$$

Introduzindo-se (22) na expressão (21) tem-se:

$$V = -j\pi a^2\omega h_a \left[\mu - \frac{1}{8}j\omega\mu^2\sigma a^2 \right]. \quad (23)$$

Entretanto, a fim de representar adequadamente a situação física, em que há um atraso da magnetização \vec{M} em relação ao campo \vec{h} , é necessário que μ seja escrito na forma complexa, ou seja, $\mu = \mu' + j\mu'' = \mu_0[(1 + \chi') + j\chi'']$. Neste caso a expressão (23) fica na forma:

$$V_L = \pi h_a a^2 \omega \left(\mu' + \frac{\mu' \mu''}{4} a^2 \omega \sigma \right) \quad (24)$$

$$V_R = \pi h_a a^2 \omega \left(\mu'' + \frac{\mu'^2 - \mu''^2}{8} a^2 \omega \sigma \right) \quad (25)$$

onde h_a é o campo aplicado na superfície da amostra e V_L e V_R as componentes da tensão na espira mostrada na Fig. 1. Entretanto em um suscetômetro-AC uma bobina de compensação para anular o sinal de saída do sistema vazio de forma que haja maior sensibilidade. Detalhes da montagem experimental de um suscetômetro AC estão descritos na referência [2]. Sendo assim, sua tensão de saída $V_L^* = h_a a^2 \pi \omega \mu_0$ deve ser subtraída da tensão na bobina sensora para determinarmos a tensão resultante do sistema. Então:

$$V_L - V_L^* = \pi h_a a^2 \omega \mu_0 \left(1 + \chi' + \frac{(1 + \chi')\chi''}{4} a^2 \omega \sigma - 1 \right). \quad (26)$$

Então, as expressões para as componentes da tensão de saída de um suscetômetro-AC são dadas por:

$$V_L = \pi h_a a^2 \omega \mu_0 \left(\chi' + \frac{(1 + \chi')\chi''}{4} a^2 \omega \sigma \right). \quad (27)$$

$$V_R = \pi h_a a^2 \omega \mu_0 \left(\chi'' - \frac{(1 + \chi')^2 - \chi''^2}{8} a^2 \omega \sigma \right). \quad (28)$$

Em um problema real devemos considerar que a bobina é finita com N espiras e comprimento λ , tendo uma amostra finita de comprimento L como seu núcleo magnético. As componentes da tensão de saída desta configuração são obtidas integrando-se as contribuições individuais de cada espira. Entretanto o campo para uma amostra finita depende também da posição axial e

é necessário conhecer esta dependência a fim de prosseguirmos. Como foi demonstrado por de Faria *et al.* [3] o comportamento de ν_L e ν_R é adequadamente descrito considerando que o campo eletromagnético propaga-se através das bases da amostra como faria ao atravessar uma interface plana infinita. Entretanto, o ajuste destes resultados experimentais requer que a escala de comprimento Δ para o decaimento exponencial seja constante, ao contrário da profundidade de penetração $\delta = \left(\frac{2}{\omega\mu\sigma} \right)^{1/2}$, que depende explicitamente de ω . Ambas porém devem depender apenas das propriedades intrínsecas do material e não da geometria da amostra.

Sendo assim, as expressões para as componentes da tensão de saída de um par de bobinas com N espiras e comprimento L , agora chamadas V_L e V_R , devem então ser corrigidas pelo fator:

$$V_L = \Gamma a^2 \left(\chi' + \frac{(1 + \chi')\chi''}{4} a^2 \mu_0 \omega \sigma \right) F(\lambda) \quad (29)$$

$$V_R = \Gamma a^2 \left(\chi'' - \frac{(1 + \chi')^2 - \chi''^2}{8} a^2 \mu_0 \omega \sigma \right) F(\lambda) \quad (30)$$

onde definimos $\Gamma = N h_a \omega \mu_0 \pi$ e $F(\lambda) = 1 - \exp(-\lambda/2\Delta)$ e $\lambda \equiv$ comprimento da amostra.

As equações (29) e (30) são soluções que representam o comportamento das componentes da tensão de saída de um suscetômetro-AC devidas a um cilindro finito de raio $r = a$ e de comprimento λ [3]. O problema matemático para um cilindro finito de qualquer material sujeito a um dado campo apresenta solução exata, desde que se conheça efetivamente o valor do campo nas suas bordas. No caso prático em um suscetômetro AC não se consegue determinar essas condições de contorno.

Analisando as expressões para V_L e V_R vemos que se $\chi'' \rightarrow 0$ é possível obter os valores de χ' e σ a partir destas. Tal possibilidade vem sendo citada desde os anos 40 por diversos autores [2]. Entretanto, ao contrário do que tem sido admitido em trabalhos anteriores, em geral χ'' não pode ser desconsiderado. É importante ressaltar que as expressões para V_L e V_R , obtidas pela primeira vez por de Faria *et al.* [3], incluem ambas a condutividade e as duas componentes da suscetibilidade, devendo pois ser empregadas no estudo de materiais com condutividade não desprezível

IV Considerações Finais

A formulação apresentada neste artigo se constitui em um excelente exercício de aplicação das equações de Maxwell para se determinar experimentalmente propriedades físicas como a suscetibilidade magnética diferencial e a condutividade elétrica. Como mostrado por Ortiz e Gelfuso [2] essa pode ser uma técnica simples de ser implementada em disciplinas experimentais

como também em laboratórios de pesquisas. Mesmo nos modernos suscetômetros comerciais atualmente disponíveis no mercado estes não levam em conta a interpretação dos resultados como apresentados aqui.

Agradecimentos

Os autores agradecem as agências financiadoras FAPESP e CNPq.

Referências

- [1] A. H. Morrish, *The Physical Principles of Magnetism*, John Wiley & Sons, Inc, New York, U. S. A. (1965).
- [2] L. Hartshorn, *J. Sc. Instrum.* **11**, 145 (1925); F. R. McKwin and W. P. Wolf, *J. Sci. Instr.* **34**, 64 (1957); E. Maxwell, *Rev. Sci. Instr.* **36**, 553 (1965) e W. A. Ortiz *et al.*, neste número da RBEF.
- [3] C. C. de Faria, A. J. A. de Oliveira, F. M. M. Araújo and W. A. Ortiz - *IEEE Transactions on Magnetics* **31**, 3403 (1995).