

UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

**O Modelo Anisotrópico Ginzburg-Landau e a
Determinação de Campos Magnéticos Dispersos em
Nanoestruturas Híbridas Supercondutoras-
Ferromagnéticas**

ANDERSON DOS SANTOS PASCHOA

VITÓRIA – ES

2020

Anderson dos Santos Paschoa

**O Modelo Anisotrópico Ginzburg-Landau e a
Determinação de Campos Magnéticos Dispersos em
Nanoestruturas Híbridas Supercondutoras-
Ferromagnéticas**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Centro de Ciências Exatas da Universidade Federal do Espírito Santo, como requisito parcial para obtenção do título em Doutor em Física, na área de Física da Matéria Condensada. Orientador: Prof. Dr. Edson Passamani Caetano e Co-orientador: Prof. Dr. Jorge Luis Gonzales Alfonso.

VITÓRIA – ES

2020

Ficha catalográfica disponibilizada pelo Sistema Integrado de Bibliotecas - SIBI/UFES e elaborada pelo autor

P279m Paschoa, Anderson dos Santos, 1991-
O modelo anisotrópico Ginzburg-Landau e a determinação de campos magnéticos dispersos em nanoestruturas híbridas supercondutoras-ferromagnéticas / Anderson dos Santos Paschoa. - 2020.
170 f. : il.

Orientador: Edson Passamani Caetano.
Coorientador: Jorge Luis Gonzalez Alfonso.
Tese (Doutorado em Física) - Universidade Federal do Espírito Santo, Centro de Ciências Exatas.

1. Sistemas Híbridos. 2. Efeito Válvula de Spin Supercondutora. 3. Campo Disperso. 4. Domínios Magnéticos. 5. Efeito de Proximidade. I. Caetano, Edson Passamani. II. Alfonso, Jorge Luis Gonzalez. III. Universidade Federal do Espírito Santo. Centro de Ciências Exatas. IV. Título.

CDU: 53



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

“O Modelo Anisotrópico Ginzburg-Landau e a Determinação de Campos Magnéticos Dispersos em Nanoestruturas Híbridas Supercondutoras-Ferromagnéticas”

ANDERSON DOS SANTOS PASCHOA

Tese submetida ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal do Espírito Santo, por webconferência, como requisito parcial para a obtenção do título de Doutor em Física.

Aprovada por:

Prof. Dr. Mucio Amado Continentino
(CBPF/RJ)

Prof. Dr. Edson Passamani Caetano
(Orientador - PPGFis/UFES)

Prof. Dr. Dalber Ruben Sanchez Candela
(UFF/RJ)

Prof. Dr. Jorge Luiz Gonzalez Alfonso
(Coorientador - PPGFis/UFES)

Prof. Dr. Victor A. Peña Rodriguez
(UNMSM/Peru)

Prof. Dr. Carlos Augusto Cardoso Passos
(DFis/UFES)

Prof. Dr. Valberto Pedrucci Nascimento
(PPGFis/UFES)

Vitória-ES, 26 de novembro de 2020



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO

PROTOCOLO DE ASSINATURA



O documento acima foi assinado digitalmente com senha eletrônica através do Protocolo Web, conforme Portaria UFES nº 1.269 de 30/08/2018, por
EDSON PASSAMANI CAETANO - SIAPE 1217335
Departamento de Física - DF/CCE
Em 26/11/2020 às 18:04

Para verificar as assinaturas e visualizar o documento original acesse o link:
<https://api.lepisma.ufes.br/arquivos-assinados/99632?tipoArquivo=O>



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO

PROTOCOLO DE ASSINATURA



O documento acima foi assinado digitalmente com senha eletrônica através do Protocolo Web, conforme Portaria UFES nº 1.269 de 30/08/2018, por
JORGE LUIS GONZALEZ ALFONSO - SIAPE 1721147
Departamento de Física - DF/CCE
Em 26/11/2020 às 18:20

Para verificar as assinaturas e visualizar o documento original acesse o link:
<https://api.lepisma.ufes.br/arquivos-assinados/99649?tipoArquivo=O>



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO

PROTOCOLO DE ASSINATURA



O documento acima foi assinado digitalmente com senha eletrônica através do Protocolo Web, conforme Portaria UFES nº 1.269 de 30/08/2018, por
CARLOS AUGUSTO CARDOSO PASSOS - SIAPE 4342552
Departamento de Física - DF/CCE
Em 26/11/2020 às 18:54

Para verificar as assinaturas e visualizar o documento original acesse o link:
<https://api.lepisma.ufes.br/arquivos-assinados/99676?tipoArquivo=O>



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO

PROTOCOLO DE ASSINATURA



O documento acima foi assinado digitalmente com senha eletrônica através do Protocolo Web, conforme Portaria UFES nº 1.269 de 30/08/2018, por
VALBERTO PEDRUZZI NASCIMENTO - SIAPE 1545401
Departamento de Física - DF/CCE
Em 27/11/2020 às 16:53

Para verificar as assinaturas e visualizar o documento original acesse o link:
<https://api.lepisma.ufes.br/arquivos-assinados/100319?tipoArquivo=O>

Dedico esta conquista primeiramente a Deus, por ser essencial em minha vida e aos meus amores: Claudinei, Elza Cristina, Edipo, Tatiane e Jeferson, minha família.

Agradecimentos

Agradeço em primeiro lugar a Deus e aos meus pais; Claudinei e Elza Cristina, aos meus irmãos Edipo, Jeferson, Tadiane e toda minha família que, com muito carinho e apoio, não mediram esforços para que eu chegasse até aqui.

Ao Prof. Dr. Edson Passamani Caetano pela paciência na orientação. Agradeço também pela confiança em mim depositada, por todas as palavras de incentivo ditas nas horas de desespero, e por me fazer terminar, esta etapa, uma pessoa mais madura e capaz. Ademais, agradeço por sempre estado presente durante meu doutorado, pelas sugestões em todo processo experimental e na discussão dos assuntos teóricos e, por fim, por todas as vezes que passava no laboratório mostrando responsabilidade pelo o mesmo e, para verificar o andamento da pesquisa. Muito obrigado.

Ao Prof. Dr. Jorge Luiz Gonzalez Alfonso pela co-orientação e pela enorme disponibilidade durante as diversas vezes que precisei discutir sobre os dados obtidos das amostras preparadas. Além disso, por todo apoio na pesquisa, pois sua disponibilidade, contribuição científica e interesse comum para o andamento do trabalho fizeram com que conseguíssemos finalizá-lo da maneira como planejado. Muito obrigado.

Aos colegas de trabalho do LEMAG pelas várias contribuições e parceria e amizade que criamos, isto é, pelo companheirismo e por me fazerem ter a certeza que essa equipe, esse local, eu nunca esquecerei. Vocês são demais. Em especial ao Mestre e técnico do LEMAG, Rafael Oliari, pelo apoio em todos os momentos nessa caminhada e também aos meus colegas de pós-graduação Alisson Krohling, Calos Henrique Verberno, Calos Eduardo Guimarães, Tales Freitas, Simone Venturini, Murilo Cecco e Camila Pinotti pelo apoio sempre.

À galera maravilhosa que conheci nesse pouco tempo que vivi em Vitória – ES.

Por fim, quero deixar meu agradecimento as instituições responsáveis pela minha formação desde o ensino fundamental e médio (técnico profissionalizante); EEEFM Prof. Célia Teixeira do Carmo e Ifes – Campus Alegre e na graduação Ufes – Campus Alegre. Agradeço ao Programa de Pós-Graduação em Física da UFES e as agências de fomento FAPES e CNPq (projetos de pesquisa do LEMAG) e CAPES (Bolsa de doutorado), sem as quais essa pesquisa não teria ocorrido.

“Se você gosta de examinar tudo, procure selecionar o que lhe faz mais feliz.

Faça isso com atenção, com vista a um hoje e a um futuro especial que deve construir.

Apenas acumular informações é esforço desnecessário a confundir os objetivos. Selecione o que tem valor e mérito, que ajuda, acrescenta e faz luz, alegria e otimismo. Depois, siga nos bons propósitos, em direção a um progresso que bate bem com o seu jeito de ser.

Quem não sabe para onde vai, fica paralisado ao ver estradas pela frente. ”

(Trecho do livro “Otimismo todo Dia” – Lourival Lopes)

Resumo

Nesta tese de doutorado, o modelo anisotrópico de Ginzburg-Landau foi experimentalmente testado. Foi definido o parâmetro físico $\Delta T_C = T_{C\parallel} - T_{C\perp}$, onde $T_{C\parallel}$ e $T_{C\perp}$ representam as temperaturas críticas supercondutora (T_C), determinadas nas configurações de campo magnético aplicado paralelo (B_{\parallel}) e perpendicular (B_{\perp}) ao plano da amostra, respectivamente. Usando a técnica *Magnetron Sputtering* (operando na geometria configuração confocal) foram preparados filmes supercondutores Nb(20-100), heteroestruturas híbridas supercondutoras-ferromagnéticas SC/FM [Nb(20-100)/Cu(5)/Co(40) e Nb(20-100)/Cu(5)/Py(2)] e as ditas válvulas de spin supercondutoras SC/FM1/FM2 VSS [Nb(20-100)/Cu(5)/Py(2)/Cu(5)/Co(40)], onde os valores entre parênteses estão em nanômetros. O comportamento anisotrópico de T_C e o efeito VSS, sob a aplicação do campo magnético foram sistematicamente investigados. Com medidas de magnetorresistência nas configurações de campos magnéticos aplicados (B_{\parallel} e B_{\perp}), foi possível obter o comportamento experimental de ΔT_C para cada sistema híbrido SC/FM e aplicando o modelo anisotrópico de Ginzburg-Landau, os valores de campo magnéticos dispersos das camadas FM foram calculados na condição de campo magnético nulo, ou seja, os campos dispersos das camadas de Co, Py e Py/Co (no sistema VSS) foram determinados em campo aplicado zero ($B = 0$ T) como sendo respectivamente $(- 8,5 \pm 0,1)$ mT, $(31,0 \pm 0,3)$ mT e $(38,0 \pm 0,4)$ mT, enquanto uma taxa de variação entre o campo disperso e o campo aplicado ($\frac{dB_{FM}}{dB}$) foi de $(- 0,22 \pm 0,02)$, $(- 0,17 \pm 0,02)$ e $(- 0,26 \pm 0,02)$, respectivamente. Com medidas de dependência angular da magnetorresistência, curvas $\Delta T_C(\theta, B)$ para filmes puros de Nb e dos híbridos Nb/FM foram obtidas, e grandes valores de efeito de válvula de spin supercondutora (EVSS) entre 60 e 300 mK foram medidos. Ao invés de usar simplesmente a possibilidade de transição dos pares de Cooper do estado singleto para tripleto, os resultados EVSS foram explicados considerando os campos dispersos efetivos derivados das alterações nos domínios magnéticos das camadas ferromagnéticas causada pelo campo magnético externo. Esses resultados trazem contribuições para esclarecer o efeito de proximidade e o efeito magnetostático; questões que ainda precisam ser bem compreendidas para aplicações tecnológicas de válvulas de spin supercondutoras.

Palavras-chaves: Sistemas Híbridos, Efeito Válvula de Spin Supercondutora, Campo Disperso, Domínios Magnéticos, Efeito de Proximidade.

Abstract

In this doctorate thesis, the Ginzburg-Landau anisotropic model was experimentally tested. The physical parameter $\Delta T_c = T_{c\parallel} - T_{c\perp}$ was defined, where $T_{c\parallel}$ and $T_{c\perp}$ represent the superconducting critical temperatures (T_c), determined in the magnetic field settings applied parallel (B_{\parallel}) and perpendicular (B_{\perp}) to the sample plane, respectively. Using the Magnetron Sputtering technique (operating in the confocal geometric configuration), superconducting films Nb(20=100), SC/FM superconducting-ferromagnetic hybrid heterostructures [Nb(20-100)/Cu(5)/Co(40) and Nb(20-100)/Cu(5)/Py(2)] and said superconducting spin valves SC/FM1/FM2 VSS [Nb(20-100)/Cu(5)/Py(2)/Cu(5)/Co(40)] were prepared, where the values in parentheses are in nanometers. The anisotropic behavior of T_c and the VSS effect under the application of the magnetic field were systematically investigated. With magnetoresistance measurements in the magnetic field configurations used (B_{\parallel} and B_{\perp}), it was possible to obtain the experimental behavior of ΔT_c for each hybrid SC/FM system and applying the anisotropic model of Ginzburg-Landau, the dispersed magnetic field values of the FM layers were calculated in the condition of a null magnetic field, that is, the stray field of the Co, Py e Py/Co (in the VSS system) layers were determined in zero applied field ($B = 0$ T) as being respectively $(- 8,5 \pm 0,1)$ mT, $(31,0 \pm 0,3)$ mT e $(38,0 \pm 0,4)$ mT, while a rate of change between the stray field and applied field ($\frac{dB_{FM}}{dB}$) was of $(- 0,22 \pm 0,02)$, $(- 0,17 \pm 0,02)$ and $(- 0,26 \pm 0,02)$, respectively. With angular dependence measurements of the magnetoresistance, $\Delta T_c(\theta, B)$ curves for pure Nb films and Nb/FM hybrids were obtained, and large effect values of the superconducting spin valve (EVSS) between 60 and 300 mK were measured. Instead of simply using the possibility of transitioning Cooper pairs from singlet to triplet state, the EVSS results were explained considering the effective dispersed field derived from changes in the magnetic domains of the ferromagnetic layers caused by the external magnetic field. The results bring contributions to clarify the proximity effect and the magnetostatic effect; issues that still need to be well understood for technological applications of superconducting spin valves.

Keywords: Hybrid Systems, Superconducting Spin Valve Effect, Stray Field, Magnetic Domains, Proximity Effect.

Lista de Figuras

- Figura 2.1: Dependência da temperatura crítica (círculos pretos) e da resistividade em 10 K (quadrados vermelhos) em função da espessura de filmes de Nb (t_{Nb}) crescidos sobre substrato de safira [58].....10
- Figura 2.2: (a) Campo crítico superior (H_{C2}) em função da temperatura para as amostras de $SrTiO_3$ dopada com Nb, para campos magnéticos aplicado perpendicular ao plano da amostra (quadrados) e paralelo ao plano (círculos). As linhas pontilhadas são os ajustes com a teoria de Ginzburg-Landau linearizada. (b) Completa dependência angular do campo crítico superior. A linha pontilhada é o ajuste com a equação de dependência angular usando a Eq. (2.3) [63].....13
- Figura 2.3: Esquema representativo da atuação do campo de desmagnetização em filmes finos (a) ferromagnéticos (FM) e (b) supercondutores (SC) [37].....15
- Figura 2.4: Esquema de possíveis sistemas híbridos: (a) bicamada FM/SC, (b) tricamada FM2/FM1/SC, (c) multicamadas FM/SC e (d) heteroestruturas com camada não magnética (NM) separando a interface SC e FM.....17
- Figura 2.5: Dependência oscilatória de T_c em função da espessura da camada Gd obtida por Jiang e colaboradores [74].....20
- Figura 2.6: Dependência de T_c vs espessura da camada de Fe ($d_{Fe} = d_{Fe}$) obtida por Müghe e colaboradores (triângulo fechado: t_{Nb} 25 nm; círculo fechado: d_{Nb} 22 nm; triângulo aberto: d_{Nb} 225) [76].....21
- Figura 2.7: Representação do efeito de uma camada ferromagnética extra F' entre a camada misturadora FM1 e a camada de drenagem FM2, para a geração de pares tripletos. As setas verdes representam as direções de magnetização de FM1 e FM2 (magnetização no plano); a seta azul indica uma camada de interface com direção de magnetização fora do plano [21].....24
- Figura 3.1: Imagem do equipamento *Magnetron Sputtering*, fabricado pela empresa *AJA Internacional Inc.* modelo ATC ORION-8 instalado no LEMAG/Ufes. Destaque para a câmara principal (evaporação) e a antecâmara, que possibilita inserir e remover amostras mantendo praticamente inalterada a pressão residual dos gases na câmara de evaporação. A válvula gaveta separando as câmaras também é nítida na figura (caixa tipo retangular metálica inclinada e acoplada com um cilindro negro que possibilita a conexão entre as câmaras)26
- Figura 3.2: Imagem esquemática de algumas das *Magnetrons* na configuração confocal (geometria de deposição oblíqua) do equipamento *Magnetron Sputtering* ATC ORION-8 usado neste trabalho (no esquema, só quatro das sete *Magnetrons* são mostradas). A célula de evaporação térmica também é

mostrada (centro). Para deposição, a direção [110] do Si é usado como referência para orientar sobre um dado alvo específico.....27

Figura 3.3: Esquema do processo de difração de raios X com incidência rasante, sendo φ o ângulo rasante de incidência, e 2θ o dobro do ângulo de difração percorrido pelo detector.....35

Figura 3.4: (a) Imagem do difratômetro de difração de raios X Ultima IV da marca RIGAKU. Em (b), as geometrias disponíveis do difratômetro RIGAKU, Bragg-Bretano e *Parallel Beam*.....36

Figura 3.5: Imagens do equipamento PPMS *Evercool-II* fabricado pela Quantum Design Inc. e operando no LEMAG. Na parte ampliada (imagem à direita) é mostrado, em destaque, o módulo MAV.....38

Figura 3.6: Esquema ilustrativo das medidas com campos magnéticos aplicados (B) para um ângulo θ qualquer relativo ao plano do filme (imagem da esquerda) e para as duas configurações principais: paralelo (\parallel - imagem central) e perpendicular (\perp - imagem da direita) ao plano do filme.....39

Figura 3.7: Esquema experimental para geometria do método de 4 pontas empregada na medida de resistividade elétrica em função da temperatura T e do campo aplicado B.....41

Figura 3.8: Esquema representando as configurações da direção variável do campo aplicado (B), a corrente elétrica (i) fixa no plano do filme durante as medidas angulares de $R(T, B)$. O ângulo θ é definido entre o plano do filme e a direção de B, sendo zero para configuração no plano (\parallel), 90° para configuração perpendicular (\perp) ao plano do filme e 180° para a configuração antiparalela (anti- \parallel) entre campo e corrente elétrica no plano.....42

Figura 3.9: Geometria das medidas de resistividade elétricas dos filmes supercondutores: (a) dispositivo de quatro pontas acoplado no módulo de resistividade do sistema PPMS, (b) configuração das medidas com o campo magnético aplicado paralelo (i) e perpendicular (i) ao plano da amostra e (c) método utilizado para medidas em função do ângulo.....43

Figura 3.10: Método utilizado na determinação de T_c dos filmes de Nb: (a) curva representativa de resistividade em função da temperatura $R(T)$, (b) curva da derivada primeira de $R(T)$ e (c) curva ilustrativa de FWHM para obtermos o parâmetro de incerteza das medidas ΔT_c44

Figura 4.1: Padrões DRX tomados à temperatura ambiente para os filmes de (a) Nb100 e (b) Nb20.....52

Figura 4.2: Curva de refletividade do filme Si/Nb20 obtida à temperatura ambiente (linha preta). A linha vermelha corresponde ao resultado do ajuste dos dados experimentais usando o programa Dyna [102]......54

Figura 4.3: Curvas $M(T)$ dos filmes de Nb100 (a) e Nb20 (b) preparados em $T_S = 100$ °C. O campo de prova aplicado perpendicular ao plano do filme e com um valor de 3 mT. Curvas de $R(T)$ dos filmes (c) Nb100 e (d) Nb20 com campo aplicado zero na configuração perpendicular ao plano do filme ($B_{\perp} = 0$ T).....56

Figura 4.4: Esquemática para mostrar a medição de resistividade [$R(T)$] de filmes supercondutores pelo método de quatro pontas (descrito no cap. 3) na interação intergranular (interação entre grãos supercondutores vizinhos), onde as bolas verdes representam os grãos SC.....58

Figura 4.5: Curvas de $M(B)$ tomadas em 2 K com o campo magnético perpendicular aos planos dos filmes de Nb, em (a) filme de Nb100 e (b) Nb20. Critério de obtenção de B_{c1} ; com o aumento gradual da corrente da bobina é observado um aumento linear na resposta negativa da magnetização proporcional ao campo aplicado até o valor de B_{c1} e, o critério está sinalizado pela linha vermelha tracejada.....59

Figura 4.6: Curvas de R/R_0 para duas amostras de Nb100 (a) e duas amostras de Nb20 (b). No canto direito de ambas as curvas se encontra o ponto de máximo da curva (em vermelho), indicando o ponto de inflexão das curvas (T_c).....61

Figura 4.7: Curvas de R/R_0 para os filmes de Nb(20 nm) (a) e Nb(100nm) (b). Os experimentos foram realizados nas duas configurações de campo magnético: paralelo ao plano da amostra ($B_{||}$: lado esquerdo) ou perpendicular ao plano da amostra (B_{\perp} : lado direito).....62

Figura 4.8: Comportamento de T_c em função do campo magnético aplicado (B) para filmes [Nb20 símbolos pretos] e [Nb100 símbolos azuis]. Os círculos completos correspondem aos dados na configuração $B_{c2||}$, enquanto os quadrados são devidos aos dados na configuração $B_{c2\perp}$. As linhas que passam pelos dados experimentais correspondem a ajustes usando funções polinomiais.....64

Figura 4.9: Comportamento da variação de temperatura crítica (ΔT_c) em função de B para os filmes Nb20 (triângulos pretos) e Nb100 (triângulos azuis). Esses dados foram obtidos da Fig. 4.5, usando a definição $\Delta T_c = T_{c||} - T_{c\perp}$. As linhas sólidas são funções matemáticas ajustados no comportamento dos dados.....65

Figura 4.10: Padrões DRX convencionais (Bragg-Brentano) normalizados para os filmes híbridos (a) Si(100)/Nb20/Cu5/Py2 e (b) Si(100)/Nb20/Cu5/Co40.....68

Figura 4.11: Curvas $M(B)$ tomadas em 300 K nas configurações de campo paralelo ($B_{//}$ -linhas vermelhas) e perpendicular (B_{\perp} -linhas pretas) ao plano do filme para os sistemas controle FM (a) Cu5/Co40 e (b) Cu5/Py2. Em (c) Nb20/Cu5/Co40 e (d) Nb20/Cu5/Py2 são também mostrados os laços $M(B)$ obtidos na configuração de campo perpendicular (B_{\perp}) e registrados em 3 K

(linhas azuis) e 10 K (linhas marrons). As configurações dos campos utilizados estão representadas no canto esquerdo superior dos gráficos (a) e (c).....71

Figura 4.12: Curvas $M(B)$ tomadas em 300 K nas configurações de campo paralelo ($B_{//}$ -linhas vermelhas) e perpendicular (B_{\perp} -linhas pretas) ao plano do filme para os sistemas controle FM (a) Nb100/Cu5/Co40 e (b) N20/Cu5/Co40. Em (c) e (d) são também mostrados os laços $M(B)$ obtidos na configuração de campo perpendicular (B_{\perp}) e registrados em 3 K (linhas azuis) e 10 K (linhas marrons) para a VVS20. As configurações dos campos utilizados estão representadas no canto esquerdo superior dos gráficos (a) e (c).....75

Figura 4.13: (a) Curvas de resistências elétricas normalizadas, R/R_0 , em função da temperatura para as VSS com diferentes espessuras de Cu (d_{Cu}): Nb20/Cu5/Py2/Cu5/Co40 (símbolos pretos), Nb20/Cu2,5/Py2/Cu2,5/Co40 (símbolos vermelhos) e Nb20/Cu0/Py2/Cu0/Co40 (símbolos azuis). Em (b), o comportamento de T_c vs d_{Cu} desses filmes SSV (em vermelho o ajuste linear dos dados).....77

Figura: 4.14: Curvas de $R(T, B)/R(B = 0, T = 10 \text{ K})$ (ou simplesmente R/R_0) para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 (a) e Nb100/Cu5/Co40 (b). Os experimentos foram realizados nas duas configurações de campo aplicado: paralelo ($B_{//}$: lado esquerdo) ou/e perpendicular (B_{\perp} : lado direito) ao plano da amostra.....78

Figura 4.15: Comportamento de T_c em função do campo magnético aplicado (B) para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 (símbolos pretos) e Nb100/Cu5/Co40 (símbolos azuis). Os círculos completos correspondem aos dados na configuração $B_{C2//}$, enquanto os quadrados são devidos aos dados na configuração $B_{C2\perp}$. As linhas que passam pelos dados experimentais correspondem aos ajustes usando funções.....80

Figura 4.16: Comportamento anisotrópico da temperatura crítica (ΔT_c) em função do campo aplicado B para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 (triângulos pretos) e Nb100/Cu5/Co40 (triângulos azuis). Esses dados são obtidos dos dados mostrados na Fig.4.15. Linhas sólidas são resultados dos ajustes. Esquemas de filmes híbridos mostrados na parte inferior da curva (triângulos azuis) são para representar o campo não homogêneo (variação na configuração de spins) na amostra Nb100/Cu5/Co40 em função de B82

Figura 4.17: Comportamento da variação da temperatura crítica (ΔT_c) em função de B para os filmes Nb100 (triângulos azuis completos) e Nb100/Cu5/Co40 (triângulos azuis abertos). Linhas sólidas são resultados dos ajustes, com funções do tipo exponencial indicadas na figura.83

Figura 4.18: Curvas de $R(B, T)/R(B = 0, T = 10 \text{ K})$ (ou simplesmente $R(T)/R_0$) para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Py2 (a) e Nb100/Cu5/Py2 (b). Os experimentos foram realizados nas duas configurações de campo aplicado: ($B_{//}$: lado esquerdo)

ou perpendicular (B_{\perp} : lado direito) ao plano da amostra. Os valores de campos estão indicados na figura.....89

Figura 4.19: Comportamento de T_c em função do campo magnético aplicado (B) para filmes de Nb20/Cu5/Py (símbolos pretos) e Nb100/Cu5/Py (símbolos azuis). Os círculos completos correspondem aos dados na configuração $B_{c2||}$, enquanto os quadrados são devidos aos dados na configuração $B_{c2\perp}$. As linhas que passam pelos dados experimentais correspondem aos ajustes funções mostradas na figura.....90

Figura 4.20: Comportamento anisotrópico da temperatura crítica (ΔT_c) em função do campo aplicado B para os filmes de Nb20/Cu5/Py2 (triângulos pretos) e Nb100/Cu5/Py2 (triângulos azuis). Esses dados são obtidos dos dados mostrados na Fig. 4.20. As linhas sólidas são os resultados dos ajustes.....91

Figura 4.21: Comportamento da variação da temperatura crítica (ΔT_c) em função de B para os filmes de Nb100 (triângulos azuis completos) e Nb100/Cu5/Py2 (triângulos azuis abertos). As linhas sólidas são devidas aos ajustes com funções do tipo exponencial, conforme equações indicadas na figura.....93

Figura: 4.22: Curvas de $R(B,T)/R(B = 0, T = 10 \text{ K})$ (ou simplesmente $R(T)/R_0$) para heteroestruturas híbridas do tipo válvula de spin supercondutora VSS20 (a) VSS100 (b). Os experimentos foram realizados nas duas configurações de campo aplicado: paralelo ($B_{||}$: lado esquerdo) ou/e perpendicular (B_{\perp} : lado direito) ao plano da amostra.....96

Figura 4.23: Comportamento de T_c em função do campo magnético aplicado (B) para os sistemas híbridos VSS20 (símbolos pretos) e VSS100 (símbolos azuis). Os círculos completos correspondem aos dados na configuração $B_{c2||}$, enquanto os quadrados são devidos aos dados na configuração $B_{c2\perp}$. As linhas que passam pelos dados experimentais correspondem aos ajustes usando funções.....97

Figura 4.24: Comportamento anisotrópico da temperatura crítica (ΔT_c) em função do campo aplicado (B) para os filmes de VSS20 (triângulos pretos) e VSS100 (triângulos azuis). Esses dados foram obtidos dos dados mostrados na Fig.24. Linhas sólidas são resultados dos ajustes.....98

Figura 4.25: (a) Esquema da configuração experimental indicando o ângulo (θ) entre o plano do filme e a direção do campo aplicado. A corrente elétrica no plano (j) também é mostrada (seta vermelha). Os parâmetros de ΔT_c determinados a partir das curvas $R(T,B,\theta)$ são mostrados para as amostras de (b) Nb20/Cu5/Co40 (triângulos completos), (c) Nb20/Cu5/Py2 (estrelas completas) e (d) heteroestrutura híbrida VSS20 – Nb20/Cu5/Py2/Cu5/Co40 (quadrados completos). Os dados de Nb20 (círculos abertos) também são adicionados em cada gráfico para comparação. As cores estão associadas a campos diferentes: preto (0,25 T), vermelho (0,5 T) e azul (1,0 T).....101

- Figura 4.26: Comportamentos de $\Delta T_c(B = 0,5 T, \theta)$ determinado a partir das curvas de $R(T, B=0,5 T, \theta)$ para (a) Nb100/Cu5/Co40 (triângulos completos), (b) Nb100/Cu5/Py2 (estrelas completas) e (c) heteroestrutura híbrida tipo VSS100 - Nb100/Cu5/Py2/Cu5/Co40 (quadrados completos). Os dados de Nb100 (símbolos abertos) foram também adicionados em cada gráfico para comparação.....109
- Figura A.1: Curva $R(T)$ obtida por Heike Kamerlingh Onnes em 1911 para uma amostra de Hg [A.1]. Figura modificada com relação ao original (nomes das grandezas em português).....125
- Figura A.2: Esquema mostrando linhas de campo magnético aplicado \vec{B} passando por uma seção transversal de um material supercondutor em duas temperaturas T fixas (a) para $T > T_c$ e (b) $T < T_c$126
- Figura A.3: Relação entre campo magnético aplicado versus temperatura para (a) supercondutor do tipo-I e (b) supercondutor do tipo-II (b) [A.27].....130
- Figura A.4: Diagrama das redes de vórtices (a) quadradas e (b) retangulares. As linhas pontilhadas mostram a célula unitária [A.9].....131
- Figura A.5: Esquema mostrando o movimento do par de Cooper por uma rede cristalina. As distorções da rede são provocadas pela passagem de um elétron que acarreta na atração de outro [A.31].....133
- Figura B.1: Esquema de uma fonte *Magnetron Sputtering* contendo o material do alvo (azul com bolas laranjas representando os átomos/moléculas que são ejetadas), a configuração dos ímãs permanentes responsáveis em manter estável o plasma (estado misto de elétrons + íons de Ar^+), o substrato (cinza) onde é depositado o filme dos átomos ejetados (laranja) (catodo representa o alvo + os ímãs = base da *Magnetron*).....138
- Figura C.1: Padrões DRX dos filmes híbridos (a) Si(100)/Nb100/Cu5/Co40 e (b) Si(100)/Nb100/Cu5/Py2.....140
- Figura C.2: Padrões DRX dos filmes híbridos (a) Si(100)/Nb20/Cu5/Co40Cu5/Py2 VSS20 e (b) Si(100)/Nb100/Cu5/Py2/Cu5/Py2 VSS100.....141
- Figura D.1: Curvas de R/R_0 para a amostra de Nb20 em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] que o campo B foi aplicado ao plano da amostra e em diferentes valores; (a) 0,25 T, (b) 0,5 T e (c) 1 T.....142
- Figura D.2: Curvas de R/R_0 para a amostra híbrida Nb20/Cu5/Co40 em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] em que o campo B foi aplicado ao plano da amostra e em diferentes valores; (a) 0,25 T, (b) 0,5 T e (c) 1 T.....143
- Figura D.3: Curvas de R/R_0 para a amostra híbrida Nb20/Cu5/Py2 em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] em que o campo B foi aplicado ao plano da amostra e em diferentes valores; (a) 0,25 T, (b) 0,5 T e (c) 1 T.....144

Figura D.4: Curvas de R/R_0 para a amostra híbrida tipo VSS Nb20/Cu5/Co40/Cu5/Py2 em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] em que o campo B foi aplicado ao plano da amostra e em diferentes valores; (a) 0,25 T, (b) 0,5 T e (c) 1 T.....145

Figura D.5: Conjunto de curvas de R/R_0 para a amostra (a) Nb100, (b) Nb100/Cu5/Co40, (c) Nb100/Cu5/Py2 e tipo (d) VSS100 [Nb100/Cu5/Py2/Cu5/Co40] em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] em que o campo B foi aplicado ao plano da amostra em $B = 0,5 T$146

Lista de Tabelas

Tabela 3.1: Parâmetros importantes dos alvos e das condições utilizadas na preparação das amostras deste trabalho.....	31
Tabela 4.1: Valores dos tamanhos médios de grãos cristalinos (τ) e dos parâmetros de rede (a) obtidos dos padrões GIXRD dos filmes de Nb(d_{Nb}).....	53
Tabela 4.2: Valores dos parâmetros de rede (a) e do tamanho de grão (τ) obtidos de ajustes dos padrões DRX das heteroestruturas híbridas de Si(100)/Nb20/Cu5/Py2 e Si(100)/Nb20/Cu5/Co40.....	68

Sumário

Lista de Figuras.....	vii
Lista de Tabelas.....	xiv
Capítulo 1.....	1
Introdução.....	1
Capítulo 2.....	7
2.1 Filmes Finos Supercondutores.....	7
2.1.1 Filmes Supercondutores.....	7
2.1.2 Fatores Experimentais que influenciam o T_c supercondutor em filmes fino.....	8
2.1.3 Segundo Campo Crítico.....	11
2.1.4 Fator de Desmagnetização em filmes SC.....	14
2.2. Sistemas Híbridos Supercondutor/Ferromagnético (SC/FM).....	16
2.2.1 Características dos Sistemas Híbridos (SC/FM).....	16
2.2.2 Comportamento de T_c em Filmes Finos Híbridos (SC/FM).....	19
2.2.3 Efeito de Proximidade: Válvulas de <i>Spins</i> Supercondutoras (VSS)..	21
Capítulo 3.....	25
Técnica de Preparação e Caracterização das Amostras.....	25
3.1 <i>Magnetron Sputtering</i>	25
3.2 Detalhes da Preparação e Deposição das Amostras.....	29
3.2.1 Limpeza dos Substratos.....	29
3.2.2 Preparo do Alvo para Deposição.....	30
3.2.4 Preparação das Amostras.....	31
3.3 Caracterização Estrutural: Difração de Raios X.....	34
3.3.1 Difração de Raios X.....	34
3.3.2 Difração de raios X em Icidência Rasante.....	37
3.4 Caracterização Magnética: Método MAV.....	37
3.5 Medidas de Transporte Elétrico: Método de 4 pontas.....	40
Capítulo 4.....	45
Abordagem Teórica e os Resultados Experimentais.....	45

4.1 Modelo teórico: Uma Nova Abordagem para Determinação do Valor do Campo Magnético Disperso (<i>Stray Field</i>) da Camada Ferromagnética (B_{FM}).	45
4.2 Resultados Experimentais dos Filmes Finos de Controle SC de Nb.....	51
4.2.1 Caracterização Estrutural dos Filmes Finos Controles SC de Nb (d_{Nb}).....	51
4.2.2 Caracterizações Magnética e de Transporte dos Filmes Finos Controles SC de Nb.....	55
4.2.3 Caracterização por Magneto-Transporte dos Filmes Finos Controles SC de Nb.....	60
4.3 Resultados Experimentais dos Filmes Finos Híbridos Controles SC/FM e Filmes Finos do tipo Válvulas de Spin Supercondutoras (VSS).....	67
4.3.1 Caracterização Estrutural das Heteroestruturas Híbridas SC/FM.....	67
4.3.2 Caracterização Magnética dos Filmes Finos Controles FM de Py e Co e das Heteroestruturas Híbridas SC/FM e VSS.....	69
4.3.3 Determinação da Influência Sobre o Valor de T_C do Nb do Espaçador Metálico de Cu nas Heteroestruturas Híbridas SC/FM (VSS).....	76
4.4 Determinação do Campo Magnético Disperso (<i>Stray Field</i>) das Camadas FM (Co e Py) nos Filmes Finos Híbridos Controle (Nb/Cu/FM) e VSS.....	77
4.4.1 Determinação do Campo Magnético Disperso (<i>Stray Field</i>) da Camada de Co (B_{Co}) em Filmes Híbridos Nb/Cu/Co.....	78
4.4.2 Determinação do Campo Magnético Disperso (<i>Stray Field</i>) da Camada de Py (B_{Py}) em Filmes Híbridos Nb/Cu/Py.....	88
4.4.3 Determinação do Campo Magnético Disperso (<i>Stray Field</i>) das Camadas de Py e Co em Filmes Híbridos tipo Válvulas de Spin Supercondutora (SSV) Nb/Cu/Py/Cu/Co.....	94
4.5 Determinação do Efeito Válvula de Spins Supercondutora nos Filmes Híbridos Controles (Nb/Cu/Py e Nb/Cu/Co) e nas Válvulas de Spin Supercondutora (Nb/Cu/Py/Cu/Co).....	99
Capítulo 5.....	112
Conclusão.....	112
Referências.....	117
Apêndice A.....	124
A.1 História da Supercondutividade.....	124
A.2 Supercondutividade: Correlação entre Propriedades e Modelos Físicos.....	129
A.2.1 Propriedades Supercondutoras de materiais SC-I e SC-II.....	129

A.2.2 Estado de Vórtices	130
A.2.3 Teoria BCS da Supercondutividade.	132
Apêndice B	136
Magnetron <i>Sputtering</i>	136
B. Referências.....	139
Apêndice C.....	140
Apêndice D.....	142

Capítulo 1

Introdução

A produção de nanoestruturas de alta qualidade e o entendimento das suas propriedades físicas estão certamente entre as questões mais desafiadoras das últimas décadas para cientistas experimentais e também os teóricos.

Para os pesquisadores da área experimental, entre as nanoestruturas amplamente preparadas e estudadas estão os filmes finos. Essa classe de materiais artificiais é definida como materiais onde suas espessuras d_{filme} (material depositado perpendicular ao substrato) têm dimensão manométrica no intervalo $d_{\text{filme}} \leq 100 \text{ nm}$ [1]. Para se preparar camadas tão finas e com potencial de aplicação tecnológica, há necessidade de equipamentos com alta qualidade no vácuo e configurações versáteis, pois as aplicações requerem sempre configurações físicas mais complexas, tais como empilhamentos alternados de camadas de materiais distintos, gerando às multicamadas ou heteroestruturas artificiais. De fato, essas heteroestruturas artificiais possuem interesse científico e tecnológico em dispositivos usados em cabeçotes de leitura magnética (válvulas de spin) [2], detectores de fóton-único [3], circuitos criogênicos para comutadores de alta frequência [4] entre várias outras aplicações tecnológicas [5,6], mesmo que alguns dos fenômenos físicos envolvidos no funcionamento do dispositivo ainda não tenham sido completamente compreendidos e experimentalmente controlados.

Entre as questões científicas em aberto, ou melhor, com um número relativamente baixo de investigação científica está a problemática intrínseca presente nos filmes finos híbridos; sistemas formados por empilhamentos de materiais com diferentes propriedades elétricas, magnéticas, térmica, mecânicas, entre outras e que suas propriedades são fortemente dependentes das interações dos átomos nas regiões interfaciais [7]. Entre os sistemas híbridos, com maior impacto para aplicações tecnológicas, estão aqueles formados com as interfaces supercondutoras e ferromagnéticas (SC/FM). Nesta tese de doutorado, em primeiro lugar, serão tratadas as questões de preparação e caracterização (principalmente com medidas de transporte elétrico) de filmes

finos supercondutores puros (SC) de Nb, e filmes finos híbridos compostos por empilhamentos de materiais supercondutores e ferromagnéticos, tais como: SC/FM e/ou SC/FM1/FM2 (Válvula de Spin Supercondutora - VSS).

De fato, os filmes finos SC são de grande interesse da comunidade científica desde década de 90 [8], pois essa classe de materiais constitui a essência dos dispositivos eletrônicos supercondutores, que normalmente operam com baixas correntes elétricas e podem, entre outras coisas, gerar campos magnéticos consideráveis. Embora, os filmes finos puros SC tenham sido bastante estudados, vários problemas ainda não estão completamente resolvidos. Por exemplo, em filmes SC (produzidos por pulverização catódica) de Nb depositados sobre substrato de Si há formação de uma camada granular. Neste caso, há o surgimento de outros fenômenos físicos, como a transição supercondutor-isolante [9]. Além disso, em geral, quando a espessura do filme SC (d_{sc}) é reduzida para uma faixa comparável à do comprimento de coerência do material (ξ_{sc}), fenômenos (não vistos nos correspondentes materiais SC volumétricos) são pronunciados; dentre eles (i) a supressão da temperatura de transição supercondutora T_c [10-14], (ii) o ponto de cruzamento entre os comportamentos tridimensional e bidimensional (3D-2D) [15-19], (iii) mudança significativa no estado SC do vórtice (na estrutura de vórtices no interior do SC), que depende da espessura e da orientação do campo magnético aplicado [20].

De maneira análoga, as heteroestruturas híbridas SC/FM têm mostrados recentemente fenômenos muito mais complexos associados as interações que ocorrem fundamentalmente devido a interface ferromagnética-supercondutora, ou seja, o efeito de proximidade e o efeito magnetostático (gerado pela camada FM); questões que também não são ainda bem compreendidas e que, portanto, carecem de mais investigação científica.

Cabe mencionar que as interações entre supercondutividade e ferromagnetismo têm sido extensivamente estudadas, nas últimas décadas [22-27] devido a possibilidade de se desenvolver dispositivos spintrônicos supercondutores, como as válvulas de spin supercondutoras (VSS). Análogo aos dispositivos válvula de spin magnéticas, usadas nos cabeçotes de leituras magnética [2], as VSS têm potencial de aplicação em tecnologia de “memória” criogênica; dispositivos que operam com baixas correntes. Como nas válvulas de spin magnéticas convencionais que operam com mudanças da resistência

elétrica pela variação na orientação relativa da magnetização de duas camadas FM (FM1,2), separadas por um espaçador metálico não magnético e uma delas travadas por outra camada antiferromagnética pelo efeito de *Exchange bias* [28], as VSS operam pela mudança no valor da temperatura de transição (T_c) quando se modifica as orientações dos spins de camadas ferromagnéticas FM1,2, ou seja, um efeito que pode ser usado para desligar o estado supercondutor (ou ligar) e reduzir (ou aumentar) a resistência total do dispositivo. Assim, no efeito de VSS, o valor de T_c é ajustado controlando a configuração de spin das camadas FM1,2 através de um campo magnético externo [21,27].

Do ponto de vista físico, a variação da T_c (em heteroestruturas híbridas do tipo VSS) é determinada principalmente por dois mecanismos: (i) o efeito de proximidade, que está intimamente correlacionado com a difusão dos pares de Cooper do estado singleto (S) supercondutor para o interior das camadas FM1,2 e (ii) a interação magnética entre um campo magnético disperso efetivo (*stray field*) e o parâmetro da ordem supercondutora SC (efeito orbital) [22,29,30]. É pertinente também destacar que a hibridação induzida por campo disperso e efeito de proximidade nas ordens supercondutoras e ferromagnéticas não apenas permite novas funcionalidades spintrônicas, mas também dá origem aos novos domínios de pesquisa da spintrônica supercondutora [21,25,26].

Na literatura [21,26], o efeito VSS tem sido basicamente explicado assumindo o efeito de proximidade, através da condição de que os pares de Cooper no estado S, ao difundirem no interior das camadas FM com uma distribuição não homogênea de campo, ganham momento e transicionam para o estado tripleto (T), ou seja, os pares de Cooper tem uma transição S-T. Essa transição favorece uma redução na densidade de pares de Cooper no estado S no interior da camada SC, conseqüentemente levando a uma redução acentuada no valor de T_c . Conseqüentemente, um segundo objetivo dessa tese de doutorado é investigar a origem do efeito VSS na heteroestruturas híbridas produzidas, levando em conta, não somente o efeito de proximidade, mas as contribuições do campo magnético disperso (*stray field*) das camadas ferromagnéticas; fato que não tem sido discutido na literatura científica. Para isso, será usado o modelo anisotrópico de Ginzburg-Landau (GL), fazendo a definição do parâmetro físico $\Delta T_c = T_{c\parallel} - T_{c\perp}$, onde $T_{c\parallel}$ e $T_{c\perp}$ são as temperaturas críticas supercondutora (T_c) medidas nas configurações de campo

magnético aplicado paralelo ($B_{\parallel} \rightarrow T_{C\parallel}$) e perpendicular ($B_{\perp} \rightarrow T_{C\perp}$) ao plano da amostra (os dados experimentais serão confrontados com o parâmetro ΔT_C). Essa metodologia, que não havia sido discutida até então na literatura (antes da tese e artigos publicados [31,32]), traz informações sobre o campo magnético disperso da camada FM sobre a camada SC nos sistemas híbridos SC/FM.

É relevante ainda dizer que os sistemas híbridos SC/FM são comumente preparados usando supercondutores metálicos de baixos valores de T_C . Entre eles, o nióbio (Nb) é o que tem sido frequentemente usado [33,34,35,36]. As principais razões para usar o Nb são: (i) tem um valor de T_C relativamente significativo, (ii) apresenta propriedades SC do tipo-II e (iii) tem seu valor de anisotropia relativamente baixo quando comparado com outros materiais SC monoatômicos. No entanto, no caso dos filmes finos puros de Nb ou em heteroestrutura híbrida de Nb/FM, a resposta das camadas de SC é fortemente dependente da direção do campo magnético aplicado [21,35]. Essa resposta anisotrópica das camadas SC está associada ao efeito anisotrópico provocado basicamente pela quebra de simetria da espessura do filme (perpendicular ao plano do filme). Como de praxe, mas importante ser aqui dito, para entendimento do efeito anisotrópico (observado em filmes finos SC e híbridos SC/FM), há necessidade de investigar sistematicamente os diferentes efeitos físicos intrínsecos ocorrentes nesses sistemas (ex.: efeito da espessura da camada SC sobre os efeitos anisotrópicos nos filmes de Nb). Neste sentido, alguns modelos teóricos podem ser testados com base em dados experimentais para trazer uma contribuição adicional ao entendimento, por exemplo, do problema da redução da temperatura crítica (T_C) pela dimensionalidade nos filmes finos puros ou a redução em T_C provocada pela mudança na distribuição de domínios magnéticos da camada FM em sistemas híbridos SC/FM. Apesar dos esforços dedicados em compreender esses problemas [21,25,35], algumas questões particulares ainda estão abertas, merecendo uma atenção especial da comunidade científica. Em outras palavras, apesar dos esforços dedicados em compreender esses problemas há várias questões ainda em aberto, merecendo atenção especial da comunidade científica.

Por exemplo, um ponto que não tem sido extensivamente explorado na literatura é a questão da quantificação do campo magnético disperso (da camada FM) em sistemas híbridos SC/FM, e conseqüentemente como esse campo

disperso varia com a mudança na sua distribuição de domínios magnéticos provocadas por um campo magnético externo. Portanto, usando o parâmetro $\Delta T_C = T_{C\parallel} - T_{C\perp}$ é possível experimentalmente estimar o campo magnético disperso da camada FM sobre a camada SC de sistemas híbridos SC/FM [31,32]. Para isso é necessário que sejam realizadas medidas de magnetorresistência em função da temperatura, do campo e sua dependência angular $[R(T,B,\theta)]$ nos filmes finos puros de Nb [espessuras distintas (d_{sc})] e em sistemas híbridos SC(d_{sc})/FM. Foi também definida a grandeza física vetor campo magnético efetivo (B_{ef}) que tem, pelo menos duas fontes, o vetor campo magnético aplicado (B) e o vetor campo magnético disperso (B_{FM}), este último oriundo da magnetização não homogênea da camada FM.

A fim de estudar as questões descritas acima (teste do parâmetro do modelo anisotrópico de GL; cálculo do campo magnético disperso, entendimento e quantificação do efeito VSS, entre outros), filmes SC puros de Nb, com duas espessuras distintas Nb ($d_{Nb} = 20$ e 100 nm) e heteroestruturas híbridas SC/FM $[Nb(d_{Nb})/Cu/Co$ ou $Py]$ e VSS $[Nb(d_{Nb})/Cu/Py/Co]$ foram preparadas sobre substrato de Si (100) usando deposição no *Sputtering Orion-8* (equipamento com configuração confocal dos *magnetrons*, formando uma ângulo de $\theta = 32^\circ$ em relação à normal do porta-amostra de deposição) instalado no Laboratório de Espectroscopia Mössbauer e Magnetometria (LEMAG) da Ufes [31,32].

Quanto as camadas de Cu. A primeira, entre as camadas SC de Nb e FM de Py (ou Co) foi incluída, pois favorece a redução da inter-difusão atômica, favorece o controle dos efeitos magnetostático e de proximidade na camada de Nb (o comprimento de correlação da camada SC de Nb é superior a 10 nm [35]). A segunda camada Cu, é dita espaçadora, e serve para descoplar magneticamente as camadas FM de Py e Co. Assim, a camada de Py poderá ter sua magnetização mais facilmente redirecionada com aplicação de um campo do que a camada de Co.

Os sistemas puro (Nb) e híbridos (Nb/Cu/FM) foram caracterizados com técnicas de difração de raios X (DRX) para verificar as estruturas cristalinas formadas, os tamanhos grãos perpendiculares ao plano do filme e os parâmetros de redes das camadas Nb, Py, Co. No filme fino puro SC Nb(20 nm) houve a determinação da rugosidade da camada de Nb (Si/Nb) através de medidas de refletividade de raios X, que foi assumida constante devido a reprodutibilidade

observada para os filmes de Nb [36]. Medidas de magnetização em função ou da temperatura $[M(T)]$ ou do campo $[M(B)]$ usando o método de magnetização de amostra vibrante para o entendimento das propriedades ferromagnéticas das camadas de Py e Co bem como das propriedades SC da camada de Nb foram executadas nos diferentes filmes puros SC, FM e híbridos. Usando o método de quatro pontas, foram realizadas (de forma massiva) medidas de magnetorresistência $R(T,B,\theta)$, buscando o entendimento do efeito de campos dispersos de camadas FM sobre as camadas SC, tanto em sistemas SC/FM como nas VSS.

Os capítulos seguintes desta tese serão divididos da seguinte forma. No Capítulo 2, será apresentada uma revisão de literatura sobre os fundamentos dos filmes finos supercondutores, heteroestruturas híbridas SC/FM e do tipo VSS. No Capítulo 3, a parte experimental de preparação e caracterização dos filmes finos e híbridos será mostrada em detalhes. No Capítulo 4, será primeiramente discutido o modelo anisotrópico GL e seus limites, com a definição do parâmetro ΔT_c (modelo teórico). Os resultados experimentais das diferentes amostras serão também discutidos e confrontados com base no modelo anisotrópico GL, onde os valores dos campos dispersos das camadas Py, Co e Py-Co serão quantificados. Por fim, no Capítulo 5, as conclusões principais conclusões serão apresentadas, bem como algumas questões para reflexões (pontos abertos). Os assuntos que trazem uma abordagem teórica da da supercondutividade e da técnica experimental *Magnetron Sputtering* estão disponíveis nos Apêndices A e B, respectivamente. Ademais, os dados adicionais que não foram discutimos nos Cap. 4, mas que obtivemos neste trabalho de tese, estão disponíveis nos Apêndices C e D.

Capítulo 2

Fundamentos da Supercondutividade e Filmes Finos Sistemas Híbridos Supercondutores-Ferromagnéticos

No Apêndice A é apresentada uma breve revisão dos principais conceitos sobre o estado supercondutor. Neste capítulo, entretanto, serão apresentados os principais estudos correlacionados com filmes finos supercondutores puros e híbridos supercondutores/ferromagnéticos (SC/FM) reportados na literatura, objetivando construir uma base para que o leitor possa ter um entendimento do assunto que será desenvolvimento nesta tese de doutorado. Neste sentido, serão abordados assuntos relacionados aos sistemas artificialmente estruturados em forma de filmes finos supercondutores (i) puros (SC), (ii) híbridos supercondutores/ferromagnéticos (SC/FM) e (iii) híbridos tipo válvulas de spin supercondutoras (VSS). No final do mesmo, será apresentada a proposta principal desta tese de doutorado.

2.1 Filmes Finos Supercondutores

Nesta seção será feita uma correlação entre parâmetros experimentais de preparação de filmes supercondutores de nióbio (Nb) e as propriedades supercondutoras: T_c e B_{c2} . Além disso, conceitos básicos do fator de desmagnetização em filmes supercondutores e ferromagnéticos.

2.1.1 Filmes Supercondutores

Como observado nas últimas décadas, praticamente todos os materiais nanoestruturados têm suas propriedades dependentes da sua dimensionalidade [35,36,37-40]. Os filmes finos estão entre os principais materiais nanoestruturados, pois na direção perpendicular ao plano do substrato há uma quebra de simetria no material depositado, conseqüentemente efeitos de superfícies e/ou interfaces, muitas vezes, determinam as propriedades dos

filmes finos ($d < 100$ nm). Em geral, as propriedades medidas são diferentes daquelas encontradas em seus respectivos materiais massivos (*bulk*, $d > 100$ nm) [1].

Os filmes SC, que podem ser usados na construção de dispositivos eletrônicos operando com baixos valores de corrente elétrica, estão entre os sistemas mais estudados e fascinantes da atualidade, pois ao se reduzir uma de suas dimensões física (d_{sc} : espessura do filme) ao valor do seu comprimento característico de coerência (ξ), provoca o surgimento de vários fenômenos interessantes nos mais variados materiais SC de baixos valores de T_c (Nb, Pb, Mo, NbSe₂ e multicamadas) [41,42]. Entre esses fenômenos, são citados: (i) a forte supressão da temperatura de transição T_c [43-46,47] e (ii) o efeito de cruzamento dimensional 2D-3D quando se varia a espessura do filme d_{sc} [15-48]. Na literatura tem se demonstrado que a natureza exata e a extensão da visibilidade dos fenômenos dimensionais são fortemente dependes dos valores de d_{sc} e ξ , mas há vários fatores experimentais que devem ser testados para uma melhor compreensão sobre as propriedades SC dos filmes finos. A seguir, serão apresentados alguns resultados relevantes de filmes SC de Nb, mostrando como alguns parâmetros experimentais influenciam em suas propriedades SC (T_c e B_{c2}).

2.1.2 Fatores Experimentais que Influenciam o T_c Supercondutor em Filmes Finos

A grandeza física T_c , que é uma das principais propriedades de um estado SC, é fortemente afetada em filmes finos pela morfologia e espessura (d_{sc}). No que diz respeito a morfologia, a qualidade dos filmes SC é determinada principalmente pelos seguintes parâmetros [36,49-57]: tipo de substrato [52], temperatura do substrato (T_s) [36,49], a taxa de crescimento [50] e a pressão do gás inerte na câmara de deposição do material [51].

Como neste trabalho de tese a base são filmes SC de Nb, então uma sistemática de resultados (reportados na literatura) para filmes SC de Nb será apresentada. Quando crescidos por *Sputtering* (pulverização catódica) em atmosfera ultrapura de Ar, há uma modificação nas microestruturas dos filmes SC de Nb quando o valor de T_s é variado [36,49]. Um exemplo particular é o trabalho

do nosso grupo [36] que mostrou que, por um lado, enquanto o tamanho de grão cristalino de Nb (d_{Nb}) permanece praticamente constante (dentro do erro experimental) e há um aumento planar no tamanho das partículas (vista por microscopia de força atômica) formadas pelos grãos cristalinos, por outro lado, há um crescimento acentuado e contínuo nos valores do parâmetro de rede da fase cúbica de corpo centrada (CCC) do Nb à medida que T_S aumenta. Como consequência dessas variações, inicialmente o valor T_C aumenta gradualmente com o crescimento no valor de T_S , mas oscila para valores de $T_S > 100$ °C [36]. Todavia, há resultados na literatura que mostra que o valor de T_C de filmes SC de Nb não depende apenas do parâmetro rede [52-53] e do tamanho de grão [52,54], mas também do material utilizado como substrato [52]. No caso dos filmes de Nb depositados no substrato de Si, alguns resultados sugerem que há uma tendência de aumento no valor do parâmetro de rede e uma redução do tamanho do grão cristalino, fatores que contribuem para a redução no valor de T_C [36,49,54].

Ainda com relação a morfologia, foi experimentalmente demonstrado que filmes SC de Nb têm sua microestrutura dependente da pressão de trabalho de Ar durante sua produção por *Sputtering* [56]. Os autores induziram modificações nos tamanhos de grãos cristalinos de filmes de Nb pela mudança na pressão de Ar durante a deposição dos filmes, mostrando que o valor de T_C tem alteração dependente tanto do tamanho de grão (t_{Nb}) quanto da espessura dos filmes de Nb (d_{Nb}). Em particular, o valor de T_C aumenta à medida que cresce a espessura do filme d_{Nb} . Em geral, o tamanho de grão d_{Nb} também tende a crescer, mas aparentemente é a espessura d_{Nb} , o fator determinante no valor de T_C . É importante frisar que mesmo em filmes muito espessos de Nb ($d_{Nb} \approx 380$ nm), os valores de T_C reportados são sempre inferiores (maior valor foi de $\approx 7,7$ K) ao do padrão (amostras *bulk* de alta pureza) que é 9,2 K [56]. A queda no valor de T_C dos filmes espessos de Nb está associada ao caráter granular dos filmes de Nb, os defeitos pontuais e as tensões internas das camadas ocasionadas pela discordância entre o parâmetro de rede do substrato e do filme de Nb [36,49, 50,57].

Com relação à espessura dos filmes SC de Nb (d_{Nb}), mas crescidos sobre substrato de Si [43] e safira [58], Gubin e colaboradores [42] e Il'in e colaboradores [58] constataram que o valor de T_C aumenta significativamente com o aumento de d_{Nb} , conforme mostrado na Fig. 2.1 transcrita da Ref. [58].

Nesta figura é possível observar o comportamento tanto de T_C dos filmes SC de Nb quanto o respectivo comportamento da resistividade elétrica em função d_{Nb} . Como pode ser visto, a resistividade rapidamente diminui à medida que d_{Nb} aumenta, enquanto há um aumento do tipo quadrático para T_C (d_{Nb}). Valores de T_C (≈ 9 K), próximo ao valor de *bulk* do Nb, são reportados neste trabalho para $d_{Nb} > 18$ nm.

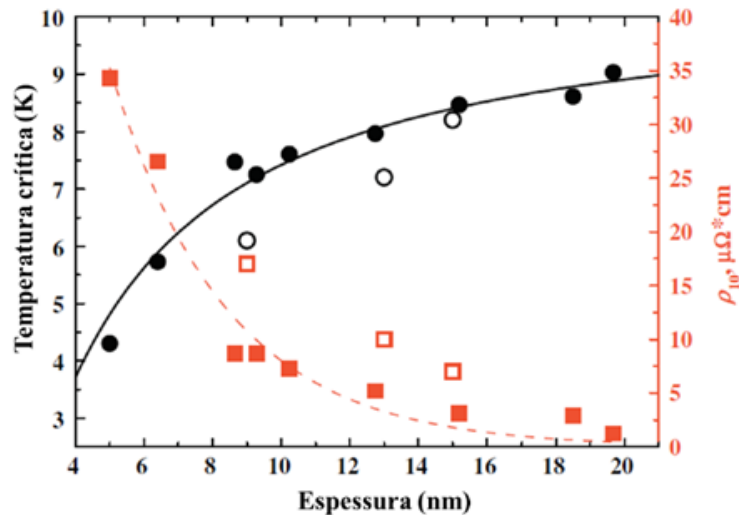


Figura 2.1: Dependência da temperatura crítica (círculos pretos) e da resistividade em 10 K (quadrados vermelhos) em função da espessura de filmes de Nb (t_{Nb}) crescidos sobre substrato de safira [58].

Todavia, o valor ótimo de T_C pode ser obtido com crescimento em substrato de safira. Entretanto, neste trabalho de tese foi optado usar substrato de Si por motivos científicos (domínio do crescimento das camadas de Nb sobre Si pelo grupo) e econômicos (alto valor dos substratos de safira e falta de recursos para aquisição). Cabe finalmente mencionar que o valor de T_C da camada SC de Nb em multicamadas também pode ser afetado por outros mecanismos, tais como: (i) o efeito de proximidade [59] e (ii) o campo magnético disperso oriundo da camada FM (*stray field*) [60], que será também tema de estudo deste trabalho de tese.

2.1.3 Segundo Campo Crítico

Outra propriedade que é também afetada com a redução do tamanho (dsc) do material SC (tipo-II) é o segundo campo crítico (B_{C2}). Apriori, para materiais SC com características bidimensionais (tipo-2D) e para uma configuração de campo magnético aplicado (\vec{B}) perpendicular ao plano, o campo crítico B_C^\perp , segundo o modelo Ginzburg-Landau [61], pode ser escrito como:

$$B_C^\perp = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi^2} \quad (2.1)$$

onde Φ_0 e ξ são o quantum de fluxo magnético e o comprimento de coerência SC, respectivamente.

Em relação aos filmes finos SC, conforme reportado na literatura [39], há uma diferença entre os valores de B_C para medidas com campo aplicado \vec{B} paralelo (B_C^\parallel) e perpendicular (B_C^\perp) ao plano dos filmes SC. De um modo geral, a seguinte dependência angular do campo crítico B_C é reportada na literatura [8]:

$$\left| \frac{B_C(\theta) \sin \theta}{B_C^\perp} \right| + \left(\frac{B_C(\theta) \cos \theta}{B_C^\parallel} \right)^2 = 1 \quad (2.2)$$

Agora, a dependência angular do segundo campo crítico (B_{C2}), pode ser obtida a partir da solução da equação bidimensional de GL, dada por [39,61]:

$$\left| \frac{B_C(\theta) \sin \theta}{B_{C2}^\perp} \right| + \left(\frac{B_C(\theta) \cos \theta}{B_{C2}^\parallel} \right)^2 = 1 \quad (2.3)$$

onde

$$B_{c2}^{\perp} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{||}^2} \quad (2.4)$$

e

$$B_{c2}^{||} = \frac{\sqrt{12}\Phi_0}{2\pi d_{SC}\xi_{||}} \quad (2.5)$$

onde d_{SC} é a espessura do filme SC, B_{c2}^{\perp} o campo crítico tomado para campo aplicado perpendicular (\vec{B}_{\perp}) ao plano do filme, $B_{c2}^{||}$ e $\xi_{||}$ são o campo crítico e o comprimento de coerência obtidos na condição em que o campo magnético aplicado está paralelo ao plano do filme ($\vec{B}_{//}$). Para configuração de campo $\vec{B}_{//}$, estados de vórtices podem não aparecer nos filmes SC se a condição $d_{SC} \ll \xi$ for satisfeita. Assim, o parâmetro de ordem ξ é considerado praticamente constante em todo o material do filme SC [39]. Além disso, considerando que para materiais SC o parâmetro de ordem pode ser escrito dentro da aproximação de campo médio como $\xi = (1 - \frac{T}{T_c})^{-\frac{1}{2}}$ [36,62], a Eq. (2.5) para filmes SC tem o comportamento linear do tipo $(1 - \frac{T}{T_c})$, enquanto que para a Eq. (2.4) tem a dependência com $(1 - \frac{T}{T_c})^{\frac{1}{2}}$ [36,62].

Por exemplo, Kozuca e colaboradores [63] reportaram propriedades 2D em amostras SC de SrTiO₃ dopadas com Nb, conforme resultados mostrados na Fig. 2.2. Em (a) são mostradas as dependências dos campos críticos superiores para as configurações de campos magnéticos aplicados paralelo ($\vec{B}_{//} = \mu_o \vec{H}_{//}$) e perpendicular ($\vec{B}_{\perp} = \mu_o \vec{H}_{\perp}$) ao plano do material bidimensional. É nítido dos dados experimentais em (a) que para a configuração $\vec{B}_{//}$ há um comportamento do tipo quadrático com a temperatura, enquanto que o comportamento linear é observado para a configuração \vec{B}_{\perp} . A dependência angular do campo crítico

$H_{c2}(\theta)$ para uma temperatura fixa é mostrada em (b), da Fig. 2.2. Esta dependência angular no valor de $H_{c2}(\theta)$ mostra um máximo para o caso de $\theta = 0^\circ$, indicando que o maior valor de H_{c2} se dá na configuração paralela do campo aplicado ($\vec{B}_{//}$).

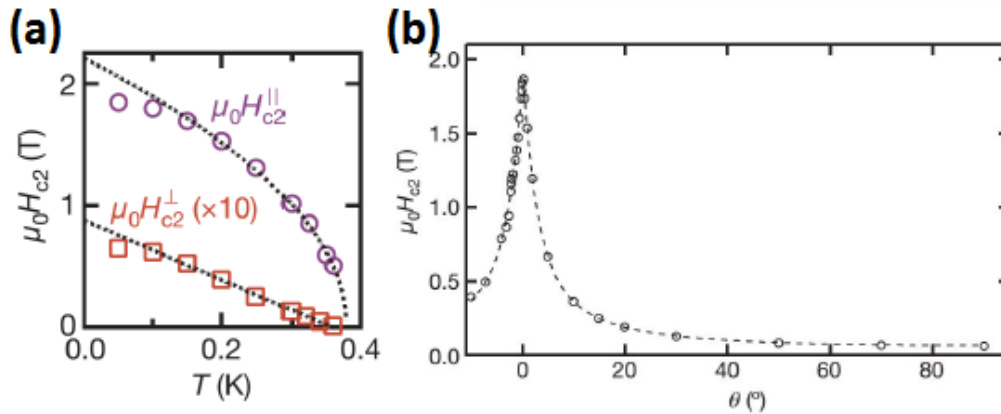


Figura 2.2: (a) Campo crítico superior (H_{c2}) em função da temperatura para as amostras de SrTiO_3 dopada com Nb, para campos magnéticos aplicado perpendicular ao plano da amostra (quadrados) e paralelo ao plano (círculos). As linhas pontilhadas são os ajustes com a teoria de Ginzburg-Landau linearizada. (b) Completa dependência angular do campo crítico superior. A linha pontilhada é o ajuste com a equação de dependência angular usando a Eq. (2.4) [63].

Para finalizar esse tópico, é importante mencionar que os valores de H_{c2} também são determinados pela morfologia e espessura (d_{sc}) dos filmes SC. Por exemplo, Bose e colaboradores [64] estudaram filmes SC de Nb com tamanhos de grãos cristalinos entre 20 a 60 nm e mostraram que há um aumento nos valores de H_{c2} de até 2,5 vezes à medida que o tamanho de grão cresce. Por outro lado, para filmes SC de Pb, Bose e colaboradores relataram comportamento inverso, ou seja, aumento de H_{c2} à medida que o tamanho das partículas diminuía de 60 para 7 nm em filmes de espessura fixa de 200 nm de Pb [64]. Adicionalmente, Dobrovolskiy e colaboradores [65] observaram um aumento em H_{c2} para filmes de Nb no limite sujo (defeitos na rede cristalina), quando comparados com filmes de Nb no limite limpo; fato que faz com que filmes tendo alta desordem podem ter altos valores de H_{c2} e, portanto, poderiam ser mais interessantes do ponto de vista da aplicação. No caso dos filmes de Nb

o que se observa é que no limite sujo enquanto o valor de H_{c2} aumenta, há uma tendência na redução do valor de T_c , tendo então um balanço no número de defeitos para se produzir as melhores propriedades supercondutoras de filmes de Nb crescidos em substratos de Si [65].

2.1.4 Fator de Desmagnetização em Filmes SC

Ao pensar em um corpo magnetizado é possível assumir a existência de “polos livres” em sua superfície que surge, por sua vez, onde a componente normal da magnetização (\vec{M}) tem uma descontinuidade [37,66-67]. Em outras palavras, no interior do material, os polos opostos dos momentos magnéticos individuais compensam uns aos outros, enquanto que na superfície surge uma densidade superficial de polos livres, dada por:

$$\rho_s = \vec{M} \cdot \vec{n} \quad (2.6)$$

onde que (\vec{n}) é o vetor unitário normal à superfície e \vec{M} a magnetização do material. Os “polos livres” produzem um campo adicional \vec{B}_d oposto à direção da magnetização \vec{M} líquida no interior do corpo. Neste caso, ao se aplicar um campo magnético aplicado \vec{B} , a intensidade do campo \vec{B}_{in} no interior do material é dada por $\vec{B}_{in} = \vec{B} + \vec{B}_d$, onde \vec{B}_d é chamado de campo magnético de desmagnetização e tem sua intensidade proporcional ao valor da magnetização \vec{M} (a constante de proporcionalidade é chamada de fator de desmagnetização e representada pela letra N_d . De fato, N_d é um tensor 3x3, em geral) e seu sentido é sempre o oposto a direção da \vec{M} do material (estado saturado) [37,66-67].

Na Fig. 2.3 são esquematicamente representados os campos magnéticos aplicado (\vec{B}) e desmagnetização (\vec{B}_d) que atuam em filmes finos FM (a) e SC (b) na configuração de campo aplicado (\vec{B}) perpendicular ao plano das amostras. A direção da magnetização (\vec{M}) também está representada em ambos materiais.

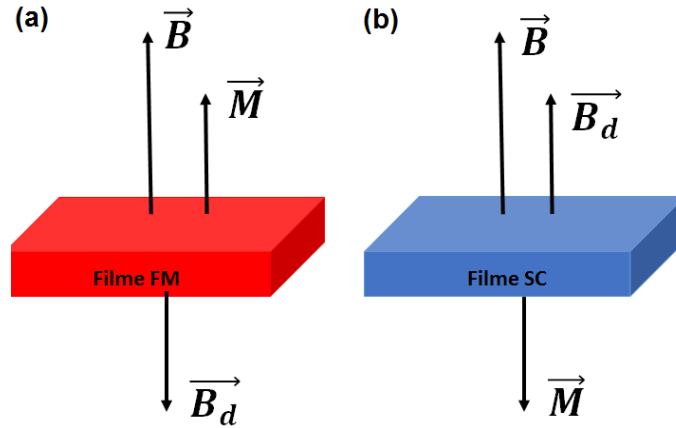


Figura 2.3: Esquema representativo da atuação do campo de desmagnetização em filmes finos (a) ferromagnéticos (FM) e (b) supercondutores (SC) [37].

O fator de desmagnetização N_d varia entre 0 e 1 (ou entre zero e 4π , no sistema GGS). Para filmes finos, $N_d = 0$ para a direção da magnetização paralela ao plano do filme, enquanto atinge o valor da unidade para magnetização perpendicular ao plano do filme [66]. Como a energia magnetostática $\epsilon_m \propto N_d M_S^2$, ela sugere que é mais fácil magnetizar no plano do filme ($N_d = 0$) do que perpendicular ao plano ($N_d = 1$), já que esta energia sempre acrescenta energia ao sistema para qualquer valor não nulo de N_d . O campo magnético no interior (\vec{B}_{in}) dos filmes (camadas individuais) será dado por:

$$\vec{B}_{in} = (\vec{B} + \vec{B}_d + \mu_0 \vec{M}) \Rightarrow B_{in} = [B \mp \mu_0(1 - N_d)M] \quad (2.7)$$

Na Eq. (2.7), o sinal (+) é usado no caso de materiais FM, enquanto que o sinal (-) para os materiais SC e representa a direção da magnetização (\vec{M}) em relação à direção do campo aplicado (\vec{B}). Além disso, no caso da magnetização uniforme \vec{M} estar no plano do filme, $N_d = 0$, e o campo interno B_{in} aumenta (diminui) relativo ao campo aplicado B para filmes FM (SC). No caso da magnetização uniforme \vec{M} estar perpendicular ao plano do filme, $N_d = 1$, o valor do campo interno B_{in} será praticamente igual ao valor do campo aplicado B para filmes FM e SC ($B_{in} = B$).

Vale primeiro frisar que: (i) toda essa aproximação considera que os materiais estão com magnetização uniformemente em seu interior, (ii) a questão

do campo B_{in} nos filmes SC de Nb será importante para o estudo da dependência de $T_c(B)$, pois como há uma diferença entre os valores de T_c tomados com o campo \vec{B} aplicado perpendicular (definindo T_c^\perp) e paralelo (definindo T_c^{\parallel}) ao plano do filme, um novo parâmetro será definido e testado experimentalmente nesta tese. É possível adiantar que na configuração de campo perpendicular (\vec{B}_\perp) haverá uma forte redução de $T_c (= T_{c\perp})$, enquanto uma redução mais moderada de $T_c (= T_{c\parallel})$ será medida para a configuração de campo \vec{B}_\parallel .

2.2. Sistemas Híbridos Supercondutor/Ferromagnético (SC/FM)

A partir desse momento, serão apresentados efeitos conjugados das interações ferromagnéticas e supercondutoras que ocorrem nas interfaces SC/FM. Com base em resultados reportados na literatura, será apresentada a influência de um material FM sobre um SC em sistemas artificialmente nanoestruturados híbridos SC/FM e também em híbridos que configuram um dispositivo tipo válvula de *spin* supercondutora (VSS). Por fim, será apresentada a proposta de trabalho desenvolvida nesta tese de doutorado.

2.2.1 Características dos Sistemas Híbridos (SC/FM)

Mesmo que os fenômenos da supercondutividade (SC) e ferromagnetismo (FM) sejam considerados, em geral, antagônicos, é possível impor uma “coexistência artificial” com a fabricação de nanoestruturas híbridas SC/FM, ou seja, empilhamentos sequenciais de camadas SC e FM das mais diversificadas configurações, conforme alguns esquemas apresentados na Fig. 2.4 (a-d).

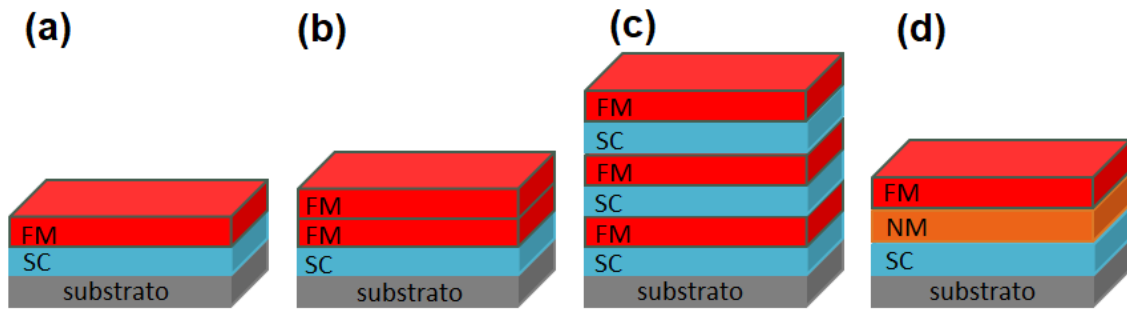


Figura 2.4: Esquema de possíveis sistemas híbridos: (a) bicamada FM/SC, (b) tricamada FM2/FM1/SC, (c) multicamadas FM/SC e (d) heteroestruturas com camada não magnética (NM) separando a interface SC e FM.

Quando camadas FM e SC estão em contato direto [ou separada por um metal não magnético Fig. 2.4 (d)], existe uma grande probabilidade de tunelamento de elétrons (ou de condução da camada FM para a SC ou pares de Cooper da SC para a FM). Em particular, em se tratando do tunelamento dos pares de Cooper do estado SC (estado S), através da interface SC/FM, há uma redução momentânea na densidade de pares de Cooper no interior do material SC que, por sua vez, provoca um efeito direto na supressão das propriedades SC (T_c). Este fenômeno é chamado de efeito de proximidade e é um dos mecanismos responsáveis pelo efeito de VVS [22,68-69]. Variações das configurações das multicamadas SC/FM, para estudo da influência do magnetismo sobre as propriedades SC, têm sido intensivamente estudadas, principalmente quando um outro material metálico não magnético (NM) é inserido na interface SC/FM [SC/NM/FM], como o sugerido pela Fig. 2.4(d) [35,69]. A inserção da camada NM ajuda a separar as diferentes contribuições da camada FM, pois ao se variar sua espessura (d_{NM}), por exemplo, é mudada a contribuição do campo magnetostático disperso da camada FM sobre a SC.

Em outras palavras, além do efeito de proximidade SC, o magnetismo da camada FM também pode atuar sobre o filme SC ou através do campo magnético disperso (*stray field*) ou através de um campo de troca via polarização dos elétrons de condução da camada NM em uma configuração SC/NM/FM, como mostrada na Fig. 2.9 (d). Ambos os campos magnéticos são devidos a camada FM e será genericamente chamado de \vec{B}_{FM} .

Como dito no início ainda deste capítulo, os pares de Cooper podem ter duas configurações: o estado singleto (S), com spin total nulo, retratando o

estado fundamental do estado SC e o estado tripleto (T), com spin total unitário. O estado T não tem sido experimentalmente reportado em estados fundamentais de materiais SC convencionais, mas devido ao efeito de proximidade tem sido usado para descrever a redução do valor de T_C em sistemas híbridos SC/FM, que possuem uma inomogeneidade na magnetização (consequentemente em \vec{B}_{FM}) [21,35]. Reciprocamente, o ferromagnetismo das camadas FM também pode ser modificado devido ao tunelamento dos elétrons da camada SC, mudando a densidade de estados no nível de Fermi, e consequentemente, mudando a interação de troca entre os elétrons do estado FM.

Apesar do aumento das pesquisas em sistemas SC/FM nos últimos anos, a influencia do ferromagnetismo sobre o estado supercondutor, consequentemente no comportamento de T_C nos sistemas híbridos ainda não foi completamente conhecido, pois o efeito de proximidade ainda requer maiores investigações para se confirmar, por exemplo, a existência cabal da transição S-T (modelo sem comprovação experimental). Há também a necessidade de se considerar outros fatores (campo magnético disperso e efeito de polarização eletrônica da camada FM) para explicar a observação experimental da redução de T_C de um filme híbrido relativo a um filme puro. Pelo menos, uma das questões acima será aprofundada nesta tese de doutorado, que é o efeito do campo magnetostático disperso da camada FM (*stray field*) sobre o T_C de filmes de Nb.

Dito isto, é relevante relembrar que os ordenamentos supercondutor e ferromagnético apresentam escalas de comprimentos característicos muito distintos, ou seja, $\xi_{FM} \neq \xi_{SC}$. O valor de ξ_{SC} é na ordem de centenas de angstroms para SC convencionais (ou $\xi_{Nb} \approx 10 \text{ nm}$), enquanto que o valor de ξ_{FM} se manifesta em dimensões menores que 2 nm [64]. Conforme explicitado nas Eqs. (2.5) e (2.6), para que efeitos anisotrópicos sejam ampliados em materiais SC, há necessidade de se trabalhar com espessuras adequadas. Como será também demonstrado neste trabalho de tese, espessuras $d_{Nb} \geq 100 \text{ nm}$ reduzem fortemente os efeitos anisotrópicos, impedindo estudos do comportamento de T_C usando as variações de $T_{C\perp}$ e $T_{C//}$ a serem definidas (mascara o efeito de proximidade, deixando-o praticamente imperceptível).

Do ponto de vista do ferromagnetismo, filmes FM muito espessos também propiciam magnetização mais homogêneas no plano do filme ($\epsilon_m \propto N_d M_S^2$),

impedindo o surgimento da contribuição do campo magnético disperso (*stray field*) fora da camada FM. A uniformidade da magnetização das camadas FM também dificulta campos não homogêneos necessários para promover a transição S-T dos pares de Cooper tunelados para a camada FM. Portanto, para estudo dos efeitos proximidade, *stray field*, polarização, transição S-T, etc., os filmes SC ou FM devem ter suas camadas no limite de um filme fino (< 100 nm).

Em sistemas híbridos SC/FM, formados de camadas finas, os estudos sobre o efeito de proximidade têm sido conduzidos, em geral, no sentido de verificar como ele afeta os valores de T_c e de B_{c2} dos filmes SC [22,35,68,69], ou seja, o efeito de proximidade tem sido usado como sendo a principal fonte na redução observada dos valores de T_c em sistemas SC/FM. Aqui, será tratada uma nova fonte para modificar T_c , que é o campo magnético disperso (*stray field*) das camadas FM. O parâmetro ΔT_c teórico, definido a partir do modelo anisotrópico de G-L, será experimentalmente testado e os valores de campos magnéticos dispersos de camadas FM de Py e Co serão calculados.

2.2.2 Comportamento de T_c em Filmes Finos Híbridos (SC/FM)

Para uma discussão sobre o comportamento de T_c em sistemas híbridos, há necessidade de se fazer algumas definições antecipadamente. Uma junção tipo- π é uma junção Josephson em que a diferença de fase entre as duas funções de onda dos pares de Cooper é $\Delta(\phi) = \pi$. Em 1992, Buzdin e colaboradores [70-71] argumentaram que um acoplamento deste tipo poderia ocorrer em sistemas SC com impurezas magnéticas, mas a densidade de impurezas deveria ser tal que a interação entre elas fosse não nula. Outra maneira seria aproximar o sistema formado por dois materiais SC separados por uma camada FM. De fato, foi demonstrado que este acoplamento ocorreria somente para determinadas espessuras da camada FM (d_{FM}) [70-71].

Após a demonstração experimental da existência de junção tipo- π em sistemas híbrido SC/FM, Radović e colaboradores, em um trabalho teórico [72], reportaram também que esse tipo de acoplamento poderia ocasionar oscilações nos valores de T_c de filmes SC, quando o valor d_{FM} fosse variado. Uma grande quantidade de trabalhos experimentais ocorreu em seguida ao trabalho de Radović e colaboradores, todos buscando demonstrar a oscilação nos valores

de $T_c(d_{FM})$. Neste sentido, Strunk e colaboradores [73], em tricamadas Nb/Gd/Nb e/ou multicamadas de Nb/Gd, crescidas pela técnica MBE (*molecular beam epitaxy*), observaram experimentalmente a dependência oscilatória de $T_c(d_{Gd})$. Os autores ainda constataram que o valor de T_c reduzia com uma queda quase exponencial com aumento de d , conforme mostrado na Fig. 2.5. Outro grupo [74-75] também demonstrou o comportamento oscilatório de T_c com a espessura das camadas FM de Gd em filmes híbridos Nb/Gd crescidos por *magnetron sputtering*. Esses resultados em filmes híbridos Nb/FM crescidos por MBE ou *Sputtering* [73-74] sugerem que o caráter oscilatório de $T_c(d_{FM})$ é uma tendência real e pode ser explicada com sendo devido a aproximação de junções do tipo- π , previsto teoricamente [72].

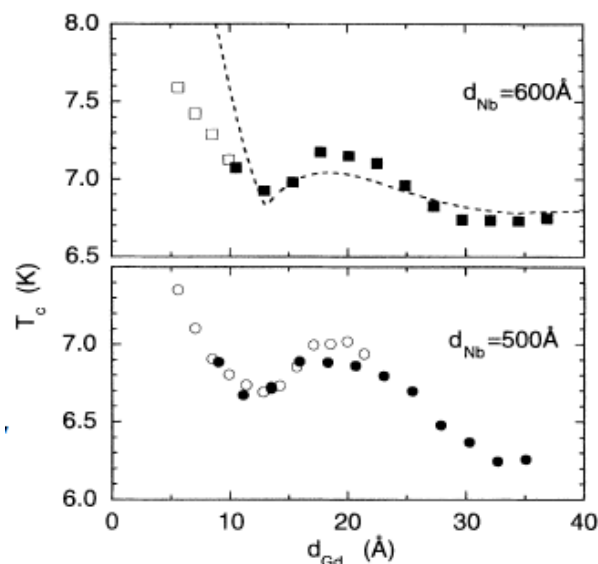


Figura 2.5: Dependência oscilatória de T_c em função da espessura da camada Gd obtida por Jiang e colaboradores [74].

Posteriormente, Müghe e colaboradores [76] observaram que a temperatura crítica T_c de bicamada Fe/Nb apresentava uma dependência não monoatômica e não oscilatória com aumento da espessura da camada ferromagnética (d_{Fe}) para um valor fixo da espessura da camada supercondutora (d_{Nb}), conforme representado na Fig. 2.6. Esta dependência é bastante semelhante àquela observada no trabalho de Jiang e colaboradores [74-75]. No caso do sistema Fe/Nb [76] foi assumido que os resultados poderiam ser

interpretados a partir da formação de uma fase não magnética na interface Nb-Fe, que geraria esta dependência não monoatômica para $T_C(d_{Fe})$. Com isso, ao usar uma camada NM entre as interfaces da camada SC de Nb e outra FM, poderia reduzir esse efeito.

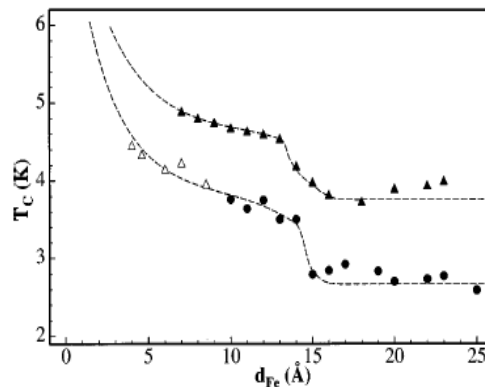


Figura 2.6: Dependência de T_C vs espessura da camada de Fe ($d_{Fe} = d_{Fe}$) obtida por Müghe e colaboradores (triângulo fechado: t_{Nb} 25 nm; círculo fechado: d_{Nb} 22 nm; triângulo aberto: d_{Nb} 225) [76].

2.2.3 Efeito de Proximidade: Válvulas de Spins Supercondutoras (VSS)

Uma válvula de *spin* simples pode ser pensada como sendo uma multicamada (heteroestrutura) composta por empilhamentos do tipo FM/NM/FM, que produz mudança na resistência elétrica quando as direções das magnetizações das camadas FM são modificadas por um agente externo, como por exemplo, campos magnéticos \vec{B} . Em geral, usando modelo de dois canais para os elétrons de condução, devidos suas polarizações up (\uparrow) e down (\downarrow) de spins, a resistência elétrica é menor (menor espalhamentos dos spins dos elétrons) quando as magnetizações das camadas FM estão paralelas, enquanto o espalhamento máximo ocorre na configuração de magnetizações antiparalelas no plano do filme [28,77]. Este efeito é conhecido como “magnetoresistência gigante” (GMR = *Giant Magnetoresistance*) e foi descoberto em 1988 pelo Prof. Dr. Mario Baibich da UFRGS e foi laureado com o Prêmio Nobel de Física em 2007. Uma das grandes aplicações na atualidade da GMR está nas cabeças de leitura em discos rígidos magnéticos.

Então, uma válvula de spin é um dispositivo que tem mudança em uma de suas propriedades (resistência, temperatura de transição, etc.) pela alteração das magnetizações das camadas FM que o compõe. Assim, uma válvula de *spin* supercondutora (VSS) é um dispositivo nanoestruturado que produz mudanças nos valores de T_c da camada SC pela alteração das magnetizações das camadas FM; modificação esta produzida, por exemplo, pelo campo magnético aplicado \vec{B} . Esses dispositivos são pensados para serem usados em circuitos operando com baixas correntes elétricas e sem produção de dissipação Joule [21,26,35]. Novamente, várias são as configurações nos sistemas VSS, mas os tradicionais são do tipo: FM1/SC/FM2 ou SC/FM1/FM2. Nesse contexto, alterar o alinhamento de camadas ferromagnéticas (FM_{1,2}) desloca o valor de T_c da camada SC adjacente, ou seja, um efeito semelhante que pode ser associado ao fato de se ligar (ou desligar) o estado SC pela mudança inclusive da resistência total do dispositivo VSS [21,26,35].

Mesmo antes à descoberta da GMR em 1988, Pierre de Gennes em 1966 [47] e outros pesquisadores, em trabalhos teóricos [78-80], propuseram a funcionalidade da VSS. Esses autores consideraram que mesmo que os portadores de carga do estado SC sejam os pares de Cooper (pares de elétrons com *spin* e *momentos* opostos) e não transportem uma corrente pura de spin, a T_c do material SC em uma VSS deveria depender do alinhamento da magnetização das camadas FM. A mudança de T_c resulta do chamado efeito de proximidade nas interfaces SC/FM, que envolve o tunelamento de elétrons emparelhados (pares de Cooper) da camada SC nas camadas vizinhas FM, suprimindo a supercondutividade e fazendo ocorrer a transição SC-N em um valor de T_c menor do que aquele em que o efeito de tunelamento dos pares fosse mínimo.

Em 2002, Gu e colaboradores [81] demonstraram o efeito VSS em um dispositivo do tipo Py(4)/CuNi(5)/Nb(18)/CuNi(5)/FeMn(6) [os valores entre parênteses estão em nanômetros (nm)]. Os autores observaram um valor de 10 mK na quantidade $\Delta T_c = T_{c(PA)} - T_{c(AP)}$, onde $T_{c(PA)}$ e $T_{c(AP)}$ são respectivamente os valores das temperaturas T_{c_s} para as configurações paralelas (PA) e antiparalelas (AP) das magnetizações das camadas FM. Todavia, esse valor de 10 mK é comparável à largura da transição SC-N e,

portanto, muito pequeno para ser empregado do ponto de vista prático (falta de resolução).

Em 2006, Moraru e colaboradores [82] demonstraram experimentalmente as previsões teóricas, encontrando uma mudança de T_c de 41 mK em heteroestruturas híbridas de Ni/Nb/Ni.

Em 2010, Fominov e colaboradores [83] propuseram que uma transição S-T poderia ser usada para ampliar o efeito VSS em estruturas de FM/FM/SC quando as configurações das magnetizações das camadas FM fossem de acoplamento ortogonal (90°) entre si. Esta configuração da magnetização no dispositivo FM/FM/SC produziria o campo magnético não homogêneo ($\vec{B}_{FM1,2}$), que favoreceria a transição S-T e, por sua vez, provocaria uma redução drástica de T_c . A proposta teórica de Fominov e colaboradores [83] foi experimentalmente observada em dispositivos do tipo FM/FM/SC [84-85]. Em outras palavras, a transição S-T tem sido explicada assumindo um campo magnético não uniforme capaz de gerar um ganho de energia cinética ao par de Cooper do estado S que, por sua vez, favorece a transição S-T [86-87]. Inicialmente um valor de variação de T_c de 120 mK foi experimentalmente medido [85].

Em 2015, Singh e colaboradores [21], usando heteroestruturas do tipo $\text{CrO}_2/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{MoGe}$ [CrO_2 e Ni são as camadas FM, Cu espaçador NM e MoGe uma camada SC], demonstraram a maior variação de T_c até o presente momento, que é de 800 mK . No experimento, com campo aplicado (\vec{B}_\perp) perpendicular ao plano do filme e representado na Fig. 2.7, os autores mostraram que a partir de magnetizações no plano para as camadas FM de Ni e CrO_2 , a magnetização da camada de Ni (magneticamente mole) foi levada para direção perpendicular (paralela a direção do campo \vec{B}), enquanto que a camada de CrO_2 (magneticamente dura) ainda permanecia com a magnetização praticamente no plano do filme. Esta condição das magnetizações das camadas FM provoca o campo magnético não homogêneo responsável pelo ganho de energia cinética dos pares de Cooper inicialmente no estado S, durante o espalhamento com esse campo magnético e, portanto, leva ao aumento de energia necessário para atingir o estado T.

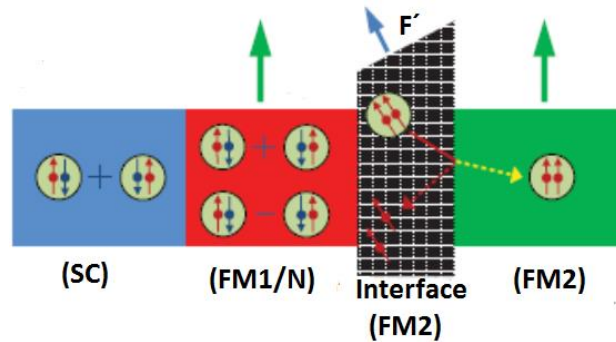


Figura 2.7: Representação do efeito de uma camada ferromagnética extra F' entre a camada misturadora FM1 e a camada de drenagem FM2, para a geração de pares tripletos. As setas verdes representam as direções de magnetização de FM1 e FM2 (magnetização no plano); a seta azul indica uma camada de interface com direção de magnetização fora do plano [21].

Para finalizar este capítulo, será apresentada a contribuição deste trabalho de tese de doutorado para o entendimento do efeito da redução dos valores de T_c de filmes de Nb em sistemas híbridos reportados na literatura. Primeiro, é importante dizer que os filmes desta tese foram preparados no sistema *Magnetron Sputtering Orion-8*, que tem suas *Magnetrons* na configuração confocal. Essa configuração da *Magnetrons* propicia, quando o porta-substrato estiver parado durante a deposição, a formação de camadas com grãos cristalinos colunares inclinados [88]. No caso de materiais FM, esta anisotropia de forma pode propiciar magnetização fora do plano e não uniformes, similar a proposta reportada na literatura [21,35]. Adicionalmente, as camadas FM escolhidas foram de: (i) Py ($Ni_{81}Fe_{19}$) que é um magneto-mole e possui grandes domínios magnéticos [89] e (ii) Co que é relativamente mais dura magneticamente e se tiver magnetização perpendicular ao plano do filme, gera domínios magnéticos pequenos em com magnetizações opostas [90]. Assim, nesta tese de doutorado será estudo o efeito da redução nos valores de T_c levando em conta as contribuições do campo magnético disperso (*stray field*) das camadas FM, algo ainda não discutido na literatura, bem como a influência da mudança nas estruturas de domínios magnéticos das camadas FM quando o campo magnético for aplicado perpendicular ao plano do filme. Um parâmetro será definido baseado no modelo fenomenológico de GL modificado e valores de campos dispersos das camadas de Py e Co serão efetivamente calculados na configuração de campo magnético aplicado nulo.

Capítulo 3

Técnica de Preparação e Caracterização das Amostras

Neste capítulo serão apresentadas as técnicas experimentais usadas na fabricação e na caracterização das nanoestruturas artificialmente preparadas por deposição de vapores atômicos/moleculares sobre substratos de silício, ou seja, filmes finos simples (supercondutores ou ferromagnéticos) e filmes híbridos (supercondutores/ferromagnéticos como o da configuração Fig. 2.4(d) ou do tipo válvulas de *spin* supercondutoras). Para orientar o leitor, no Apêndice B um breve relato do método *Magnetron Sputtering*, com configuração confocal das *Magnetrons* será discutido. Os processos de medidas e principais características relativas as técnicas de caracterização estrutural [difração de raios X (DRX) e refletividade de raios X (RRX)], magnética [magnetometria de amostra vibrante - MAV] e de transporte elétrico [método de quatro pontas para medidas da resistência elétrica realizadas em diferentes intensidades de campos magnéticos] serão também apresentados para uma melhor discussão dos resultados obtidos.

3.1 *Magnetron Sputtering*

Nesta tese de doutorado, as nanoestruturas metálicas (filmes puros e híbridos) foram preparadas no sistema *Magnetron Sputtering*, modelo ATC ORION-8 fabricado pela empresa *AJA International Inc.* (Fig. 3.1). Nesse equipamento, instalado no LEMAG/UFES (Laboratório de Espectroscopia Mössbauer e Magnetometria), as *Magnetrons* são montadas na base da câmara de deposição na configuração confocal (Fig. 3.2), ou seja, com o centro das *Magnetrons* (de duas polegadas de diâmetro) formando um ângulo de 32° com relação ao centro do porta-substrato (disco de quatro e meia polegadas). Há sete *Magnetrons* montadas no ATC ORION-8 e as disposições de seus imãs permanentes dentro das *Magnetrons* possibilitam o uso de alvos ferromagnéticos e não ferromagnéticos.

Há também uma célula de evaporação térmica, que não foi usada nesse trabalho, mas também representada na Fig. 3.1. Nas *Magnetrons*, há um obturador na parte superior de cada chaminé, que possibilita interromper o feixe de vapor que chegaria ao substrato. Este, por sua vez, é montado no centro do porta-substrato (4,5 polegadas de diâmetro) e posicionado acima e no centro geométrico das sete *Magnetrons*. Através de um controle automático, realizado por meio de computador e um software da empresa AJA, é possível dominar o acionamento dos obturadores (aberto ou fechado) das *Magnetrons* individualmente, o fluxo de gás de argônio para criação do plasma, a temperatura do substrato, entre outros parâmetros de deposição. Na preparação de cada amostra, uma rotina de operação é criada e o software executa as atividades determinadas pelo operador. Com isso, camadas finas e homogêneas de diferentes materiais foram crescidas sobre substrato de silício monocristalino [Si(100)] naturalmente oxidado em uma pressão de trabalho de (PT) de Ar de 2,0 mTorr.

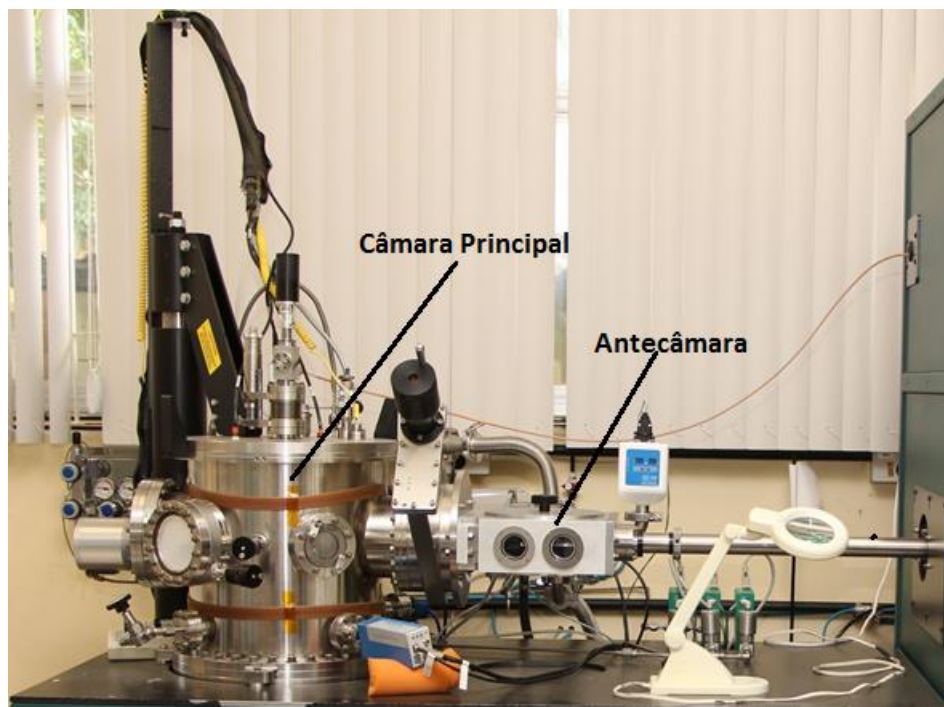


Figura 3.1: Imagem do equipamento *Magnetron Sputtering*, fabricado pela empresa *AJA Internacional Inc.* modelo ATC ORION-8 instalado no LEMAG/Ufes. Destaque para a câmara principal (evaporação) e a antecâmara, que possibilita inserir e remover amostras mantendo praticamente inalterada a pressão residual dos gases na câmara de evaporação. A válvula gaveta separando as câmaras também é nítida na figura (caixa tipo retangular metálica

inclinada e acoplada com um cilindro negro que possibilita a conexão entre as câmaras).

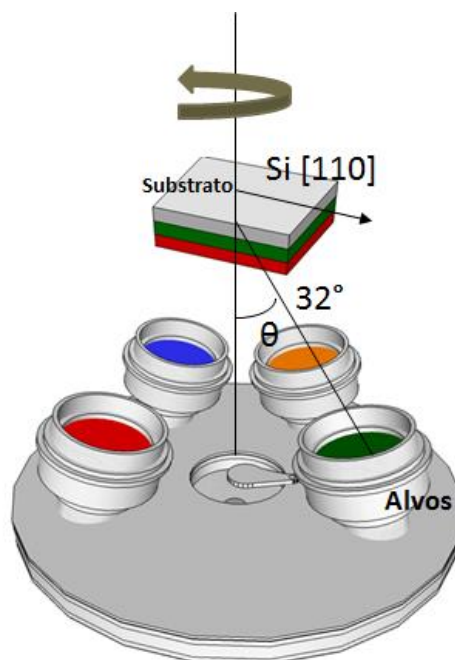


Figura 3.2: Imagem esquemática de algumas das *Magnetrons* na configuração confocal (geometria de deposição oblíqua) do equipamento *Magnetron Sputtering* ATC ORION-8 usado neste trabalho (no esquema, só quatro das sete *Magnetrons* são mostradas). A célula de evaporação térmica também é mostrada (centro). Para deposição, a direção [110] do Si é usado como referência para orientar sobre um dado alvo específico.

O processo de *Magnetron Sputtering* (ejeção de átomos/moléculas – vide Apêndice B) do ATC ORION-8 (Fig. 3.1) consiste basicamente de fontes de correntes DC ou RF, que geram campos elétricos no plano, enquanto que os ímãs permanentes geram campos magnéticos perpendicular ao plano do alvo. Essa conjugação campos elétricos e magnéticos transversais mantém o plasma estável mesmo em baixas pressão de argônio (o papel do campo magnético é equivalente a um aumento da pressão do gás de trabalho), possibilitando filmes mais homogêneos na profundidade e lateralmente e, o mais importante, com baixa rugosidade interfacial.

Uma grande desvantagem do método *Magnetron Sputtering* é a grande perda de material do alvo (~ 30 % só aproveitado para ejeção de átomos) ocasionada pela concentração do plasma em uma área limitada da área superfície total do alvo (concentração do plasma somente em uma região circular

da área do alvo de 2 polegadas de diâmetro) [91]. Como mostrado na imagem do *Magnetron Sputtering* ATC ORION-8 (Fig. 3.1), há duas câmaras com ambientes de UHV. A antecâmara (ou *load-lock*), com um sistema independente de UHV e atinge vácuo da ordem de 2×10^{-6} mTorr em aproximadamente 30 minutos, possui acoplado um braço móvel que pode ser deslocado entre as câmaras, e onde é colocado o porta-substrato (com substrato) para ser inserido na câmara principal de evaporação. Essa última, por sua vez, possui em base circular com sete *Magnetrons* montados na geometria confocal e uma célula de evaporação térmica (Fig. 3.2, onde são mostradas quatro das sete *Magnetrons* do ATC ORION-8). O seu sistema de UHV da câmara principal proporciona um vácuo da ordem de 2×10^{-8} mTorr, com uma atmosfera residual praticamente constante durante vários meses de preparação das amostras. A checagem da constituição dos gases da câmara de deposição é feita com um equipamento RGA (*Residual Gas Analyzer*), da marca HORIBASTEC. Maiores detalhes sobre o sistema *Magnetron Sputtering* ATC ORION-8 estão nas referências [36,88].

A configuração confocal das *Magnetrons* propicia naturalmente o surgimento do efeito de sombreamento (*shadow effect*) durante o crescimento dos filmes, caso o porta-substrato não esteja girando durante a deposição (a rotação do porta-substrato é feita por um motor elétrico acoplado ao eixo do porta-substrato) [88]. Na configuração de porta-substrato parado, os grãos cristalinos, que estão sendo crescidos no substrato, possuem forma de colunas com orientação de 32° relativo à normal do plano do substrato, ou seja, nessa configuração, a deposição oblíqua gera grãos orientados e inclinados com uma forte anisotropia de forma (anisotropia uniaxial) [88]. Por outro lado, se o porta-substrato estiver girando (rotação até 40 RPM), os grãos cristalinos terão seus crescimentos no plano do substrato com orientação aleatória, gerando filmes policristalinos no plano do filme, mas que pode ter uma orientação preferencial (textura cristalina) perpendicular ao plano do filme.

3.2 Detalhes da Preparação e Deposição das Amostras

3.2.1 Limpeza dos Substratos

A limpeza dos substratos é classificada como sendo também uma das etapas fundamentais para a confecção das amostras (crescimento dos filmes) de alta qualidade. Este processo deve ser feito de tal maneira que os filmes possam, quando crescidos nas mesmas condições, apresentar propriedades físicas muito semelhantes entre si se forem feitas réplicas de amostras. Então, a contaminação da superfície dos substratos pode provocar: (i) uma baixa adesão da camada sobre o substrato, (ii) formação de fases indesejáveis no filme crescido, (iii) propriedades físicas que são difíceis de serem reproduzidas e entendidas, entre outras consequências. O substrato escolhido neste trabalho foi o silício monocristalino [Si(100)] por ser (i) um semicondutor que é a base da microeletrônica atual, (ii) economicamente viável e (iii) pelo fato do grupo ter experiência na produção de filmes de Nb com alta reprodução das propriedades.

Os procedimentos de preparação e limpeza dos substratos Si(100) já estão bastante estabelecidos na rotina de preparação de filmes no LEMAG [36,88,92] e, portanto, serão apresentados rapidamente. Primeiramente, discos de Si(100), com diâmetro de aproximadamente 100 mm, são cortados com uma caneta de ponta de diamante nas seguintes dimensões $1 \times 1 \text{ cm}^2$ ou $1,0 \times 0,4 \text{ cm}^2$. É importante enfatizar que há uma marca da direção planar [110] do disco de Si que, por sua vez, é transferida para cada pedaço cortado e serve como referência na hora de colocar o pedaço cortado de Si para evaporação, principalmente na configuração de deposição com o porta-substrato parado (Fig. 3.3).

Os substratos cortados de Si(100) são colocados em um Becker contendo uma solução formada de detergente neutro e água destilada (1:10). Esse Becker é então colocado, por 10 minutos, em um equipamento de ultrassom, para uma primeira limpeza das gorduras superficiais. Em seguida, esses pedaços são individualmente removidos e submergidos em acetona P.A. em um novo Becker e, novamente submetidos, por 10 minutos, ao equipamento de ultrassom. A acetona é movida cuidadosamente dos substratos e, então, são novamente imersos em outro Becker contendo álcool Isopropílico P.A. Esse Becker é

colocado também por 10 minutos no equipamento de ultrassom. Por fim, após esses 10 últimos minutos no ultrassom, o álcool é trocado por outra quantidade, e o Becker é coberto com papel alumínio, para reduzir a evaporação do álcool e depósitos de impurezas sobre os substratos já limpos. Ou seja, vários pedaços limpos de Si ficam armazenados e aptos para serem usados individualmente na preparação de filmes no equipamento *Magnetron Sputtering*. Antes de colocar o pedaço de substrato no centro do porta-substrato, o mesmo é retirado do banho do álcool e submetido a um jato de Ar ionizado para secagem e remoção de gotículas de poeira, etc.

3.2.2 Preparo do Alvo para Deposição

Os alvos (deste trabalho de tese) foram fabricados pela empresa ACI-alloys, possuem diâmetro de 2 polegadas, espessuras de 1/8 de polegada, purezas melhores ou iguais a 99,95% e são instalados no *Magnetron Sputtering* ATC ORION-8, conforme esquema mostrado na Fig. 3.3.

A cada troca de alvo, as *Magnetrons* passam por um criterioso processo de limpeza de suas superfícies (chaminés, obturadores, flanges, etc.), usando jateamento com esferas de vidro, banho em acetona e aquecimento em muflas a 150 °C por algumas horas. Os substratos, como dito acima, são individualmente inseridos pela antecâmara (Fig. 3.1), sem precisar quebrar o vácuo da câmara principal de evaporação. A inserção se dá com um manipulador e pela válvula do tipo gaveta que separa as duas câmaras (antecâmara e principal). A válvula gaveta só é aberta quando o vácuo da antecâmara atingir, no mínimo, o valor de 4×10^{-6} Torr (após 30 minutos de bombeamento).

Com o vácuo de 2×10^{-8} Torr na câmara de evaporação, o porta-substrato é inserido a partir da antecâmara e acoplado na haste vertical da câmara principal; haste esta acoplada a um motor elétrico que permite girar ou não o porta-substrato acoplado durante a deposição (rotação máxima de 40 rpm). Em seguida, a válvula gaveta é fechada, é aguardado que o vácuo novamente retorne ao valor de 2×10^{-8} Torr na câmara principal de deposição. Toda semana a pressão residual dos gases na câmara de deposição é verificada para garantir que não há mudanças percentuais nos constituintes. Após atingir o vácuo de 2×10^{-8} mTorr é feita a injeção com gás Ar ultrapuro (99,999% – 5N) a uma pressão

trabalho (PT) de 2,0 mTorr (PT que favorece baixa inter-difusão atômica nas interfaces [91]).

Nestas condições, o plasma foi aceso em cada uma das *Magnetrons* usadas neste trabalho (Nb, Cu, Co, Ni₈₁Fe₁₉ = Py = *permalloy*), mas mantendo todos os obturados das *Magnetrons* acionadas fechados para evitar depósito de material indesejável no substrato. Essa ação foi sempre feita para que houvesse limpeza das superfícies dos alvos após os mesmos ficarem, pelo menos, 36 horas desligados (processo chamado de pré-*Sputtering*). O tempo desse processo dependeu do material do alvo e teve como finalidade remover camadas atômicas dos alvos que são contaminadas por impurezas de diversas fontes. Especificamente, os tempos de pré-*Sputtering* foram (i) 15 minutos no caso do alvo de Nb, pois esse material era muito susceptível a atmosfera residual (a reprodução dos resultados dos filmes de Nb só era obtida quando este tempo de pré-*Sputtering* foi usado) e (ii) máximo de 5 minutos, no para os alvos de Cu, Co e Py.

Na Tabela 3.1 são apresentados os parâmetros de trabalho tanto relativo aos alvos quanto do processo de fabricação dos filmes puros (supercondutores - SC ou ferromagnéticos - FM), os filmes híbridos bicamadas de SC/FM e os filmes com configuração do tipo SC/FM₁/FM₂ – VSS.

Tabela 3.1: Parâmetros importantes dos alvos e das condições utilizadas na preparação das amostras deste trabalho.

Alvos	Pureza(%)	Corrente(mA)	Tensão(V)	Potência(W)	Taxa (nm/s)
Nb	99,99	400	348	142	0,068 ± 0,002
Cu	99,95	100	349	34	0,053 ± 0,001
Co	99,99	200	330	77	0,043 ± 0,002
Py	99,95	200	378	76	0,043 ± 0,001

3.2.4 Preparação das Amostras

Antes de falar da preparação das amostras, é importante dizer que nas VSS [configuração SC/NM/FM₁/NM/FM₂], a camada FM₁ é escolhida para ser a mais susceptível entre as camadas FM referente a alteração a intensidade e

direção do campo magnético externo, sendo chamada de “camada livre” (é mudada mais facilmente com mudanças na direção do campo magnético aplicado). A camada FM₂, que é praticamente desacoplada magneticamente da camada FM₁ pela camada espessa não magnética (NM), pode também ter modificada sua estrutura de spins com a presença de campos magnéticos, mas os valores devem ser maiores do que aqueles que saturam a camada FM₁. Em outras palavras, a camada FM₂, por ter uma anisotropia magnética maior do que da camada FM₁, é chamada de “camada presa ou travada”. Em particular, o material FM₁ escolhido foi o Py por ser um dos materiais mais usados nas indústrias [93]. Para a camada FM₂, foi escolhido o Co por apresentar uma magnetização de saturação diferente do Py e ter maior anisotropia magnética, ou seja, possibilitando uma magnetização não homogênea no sistema VSS que, por sua vez, possa contribuir para amplificar o fenômeno de válvula de spin supercondutor [VSS = mudanças nos valores da temperatura crítica supercondutora (T_c) pelas mudanças nas estruturas de spins das camadas FM] [21,35]. Um dos critérios para seleção do espaçador não magnético (NM) é alta condutividade elétrica. Entre os metais mais utilizados na literatura são reportados Ag, Au, Cu e Ru, onde o Cu se destaca devido ao seu bom custo-benefício, a possibilidade favorecer o crescimento das fases cúbicas de face centradas (CFC) do Py e Co e evitar possível formação de camada morta magnética nas interfaces Nb/Py e Nb/Co [35,94].

Dito isto, foram fabricadas duas classes de nanoestruturas: os filmes finos puros (SC ou FM) e as heteroestruturas híbridas (SC/FM). Os filmes finos puros são os SC de Nb: Si(100)/Nb(d_{Nb}) e os FM a base de Py e Co: Si(100)/Cu(5)/Py(2)/Cu(3) e Si(100)/Cu(5)/Co(40)/Cu(3). As heteroestruturas híbridas SC/FM são: Nb(t_{Nb})/Cu(5)/Py(2)/Cu(3) e Nb(t_{Nb})/Cu(5)/Co(40)/Cu(3). As chamadas válvulas de spins supercondutoras (VSS) são: Nb(t_{Nb})/Cu(d_{Cu})/Py(2)/Cu(d_{Cu})/Co(40)/Cu(3). Os valores entre parênteses das configurações acima correspondem as espessuras e estão em nanômetros (nm). Os parâmetros d_{Nb} e d_{Cu} correspondem respectivamente as espessuras das camadas de Nb e de Cu, cujos valores, usados neste trabalho, foram 20 e 100 nm para o Nb e zero, 2,5 e 5 nm para o Cu. Para essas espessuras d_{Cu} [que separam as camadas supercondutora (Nb) das ferromagnéticas (Co e Py)], os pares de Cooper supercondutores da camada de Nb, que têm um comprimento

de coerência aproximadamente de 10 nm [96], podem tunelar da camada supercondutora de Nb para as camadas ferromagnéticas (FM) adjacentes de Py e/ou Co, favorecendo assim o efeito de VSS, discutido no Capítulo 2. Adicionalmente, essa camada espaçadora de Cu entre as camadas de Nb e Py e/ou Co também serve como redutora de inter-difusão atômica e controle dos efeitos magnetostático e de proximidade na camada Nb devido as camadas FM [21,35,94]. A outra camada espaçadora de Cu entre as camadas FM de Py e Co favorece o desacoplamento magnético entre estas camadas FM (para $t_{Cu} = 5$ nm, as camadas de Py e Co tem baixíssima interação magnética [88]). Desta forma, a camada de Py poderá ter sua magnetização mais facilmente redirecionada com aplicação de um campo magnético do que a camada de Co. Finalmente, a camada de Cu de cobertura dos filmes de 3 nm de espessura é simplesmente usada para reduzir uma oxidação severa dos filmes. Essa camada de Cu (*capping layer*) permitiu que os filmes mantivessem suas propriedades globais por até 12 meses da data de suas fabricações.

Voltando a questão da deposição das camadas (filmes), as camadas de Nb foram depositadas com o porta-substrato girando a 30 RPM e com a temperatura do substrato (T_s) mantida em 100 °C (essa temperatura foi previamente estabelecida em outros trabalhos e ela é que gera o maior valor de T_c dos filmes de Nb crescidos sobre Si em nosso sistema [36]). As outras camadas foram todas depositadas quando o substrato atingiu a temperatura ambiente (300 K – no mínimo 24 horas após a deposição da camada de Nb) e com o substrato parado para gerar grãos cristalinos orientados em forma colunas inclinadas com relação ao plano do substrato (processo natural de crescimento das camadas devido ao efeito de sombreamento oriundo da configuração confocal das *Magnetrons* [88]).

Detalhe do Crescimento das Amostras: Filmes Supercondutores, as Bicamadas SC/FM e as Válvulas de *Spin* Supercondutoras VSS

Como dito acima, os filmes de Nb (20 e 100 nm) foram todos depositados com o porta-substrato rodando a 30 RPM e mantido a 100 °C ($T_s = 100$ °C). Após o crescimento da camada de Nb (d_{Nb}), rapidamente a pressão da câmara retornava a 2×10^{-8} mTorr, mas houve sempre a necessidade de aguardar por

24 horas até que o porta-substrato indicasse novamente 300 K para, então, iniciar a deposição das demais camadas. Se a deposição das outras camadas fosse realizada ainda com $T_s = 100$ °C ocorreria uma possível inter-difusão, conforme experimentalmente verificado durante este trabalho (propriedades supercondutoras da camada de Nb são degradadas drasticamente).

O crescimento por etapas/individuais das camadas posteriores (NM e FM), foi feito com a seguinte metodologia. Foi primeiro alinhado à direção [110] do substrato de Si com relação ao alvo desejado. Sabendo que o alvo faz um ângulo natural de 32° com relação a sua normal e com o substrato parado, a deposição da camada de Cu (na espessura desejada) foi realizada controlando o tempo de abertura do obturador pela rotina criada e acionada pelo software de controle do ATC ORION-8.

Com o uso de um goniômetro do lado de fora da câmara principal e conhecendo a posição do segundo alvo (*Magnetron*) a ser depositado, o porta-substrato foi girado, com a marca do substrato agora apontando para o novo alvo, e a camada FM (ou NM) foi então depositada. Esse procedimento foi repetido até que a configuração desejada dos filmes híbridos fosse atingida. Com essa metodologia e considerando o processo de deposição com configuração oblíqua (usado na confecção das camadas não supercondutoras), a literatura mostra que há uma alta influência das microestruturas nas camadas NM (Cu) e FM (Py e Co) [91]. Na Figura 3.3 é esquematicamente apresentada a geometria confocal das *Magnetrons* do sistema *Magnetron Sputtering* ATC ORION-8 usada na preparação de filmes principalmente das camadas sementes de Cu e daqueles dos FM de Py e Co, onde em todos os casos os grãos cristalinos de cada fase tinham como características serem orientados e inclinados em relação ao substrato.

3.3 Caracterização Estrutural: Difração de Raios X

3.3.1 Difração de Raios X

O estudo dos arranjos atômicos das camadas foi feito com a difração de raios X, onde foram obtidas informações da estrutura cristalina das fases de cada camada crescida. O método usado neste trabalho foi o de difração com

incidência rasante do feixe de raios X (GIXRD – *Grazing Incidence X-ray Diffraction*), pois permite diminuir a contribuição do substrato para o padrão de difração de raios X (DRX). Em alguns casos, o método Bragg-Brentano foi também usado. Na GIXRD, a geometria convencional (Bragg-Brentano) é modificada para proporcionar um resultado de difração assimétrico, que permite atingir pequenas profundidades de penetração da superfície da amostra. Isto é possível pela incidência de um feixe de raios X quase paralelos à superfície da amostra com ângulo fixo e bastante baixo, conforme sugere o esquema da Fig. 3.3. Em geral, são considerados ângulos baixos os valores de φ (ângulo de incidência entre o plano do filme e o feixe de raios X) menores do que 10° [95-96].

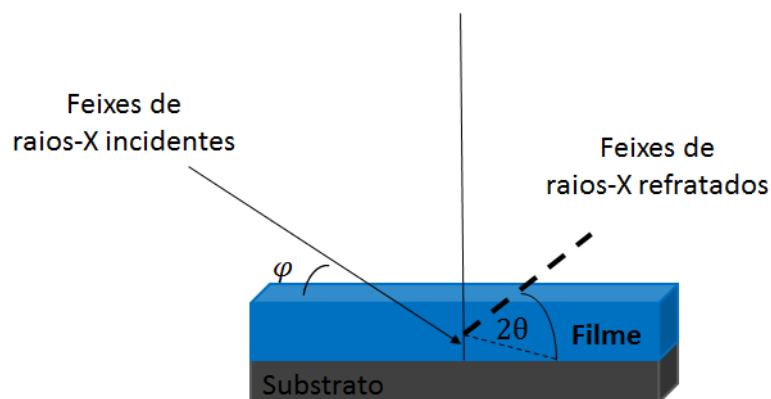


Figura 3.3: Esquema do processo de difração de raios X com incidência rasante, sendo φ o ângulo rasante de incidência, e 2θ o dobro do ângulo de difração percorrido pelo detector.

As medidas foram executadas no difratômetro Ultima IV da marca RIGAKU [Fig.3.4(a)]; equipamento que possui a tecnologia CBO (*Cross Beam Optics*), que, através de componentes óticos alinhados simultaneamente, produz feixes de raios X divergentes (*Bragg Brentano*) ou feixes paralelos (*Parallel Beam*), como indicado na Fig. 3.6(b). Neste trabalho, foi usada a geometria *Parallel Beam*, com um ângulo de incidência φ fixo em 1° , enquanto o detector realizou a varredura angular da superfície do filme $2\theta = 30 - 90^\circ$.

Para obter os padrões de DRX deste trabalho foi utilizada uma lâmpada de Cu de 2 kW, operando com 60 % de sua potência (40 kV e 30 mA). Com um

filtro de níquel (folha de Ni), a radiação do tipo K_{β} do tubo de Cu foi praticamente absorvida, proporcionando então um feixe de raios X com radiação composta pelas duas linhas do Cu K_{α} , ou seja, produzindo um feixe de raios X para o processo de difração com radiação tendo um comprimento de onda $\lambda = 0,15418 \text{ nm}$.

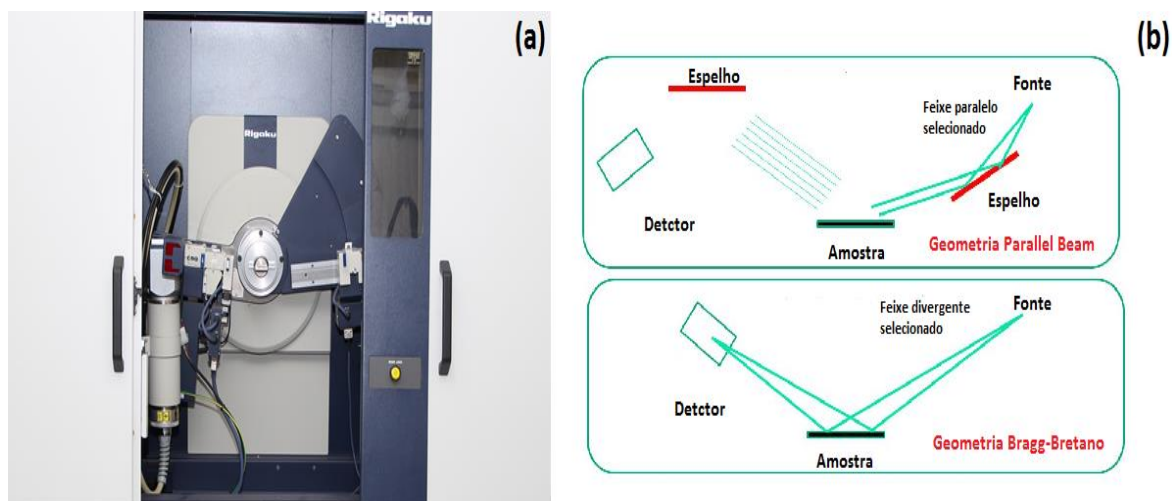


Figura 3.4: (a) Imagem do difratômetro de difração de raios X Ultima IV da marca RIGAKU. Em (b), as geometrias disponíveis do difratômetro RIGAKU, Bragg-Bretano e *Parallel Beam*.

Cada padrão de DRX foi obtido no intervalo angular $2\theta = 30 - 90^\circ$, com passo de $0,05^\circ$ e com tempo de contagem pelo detector por passo de 2 segundos. Num segundo momento, após a verificação das posições angulares dos picos de Bragg das diferentes fases, uma nova varredura, mais lenta por passo, foi realizada (5 segundos por passo), a fim de melhorar a razão sinal ruído dos padrões de DRX. Os picos de Bragg dos padrões de DRX foram então ajustados usando o software Origin, usando linhas do tipo lorentzianas. Com os parâmetros obtidos (posição angular e largura de linha à meia altura) dos ajustes dos picos de cada fase (camada), foram calculados o parâmetro de rede usando a Lei de Bragg da difração e o tamanho de grão perpendicular (no caso das medidas θ - 2θ , ao plano do substrato pelo método de Scherrer [97-100].

3.3.2 Difração de Raios X em Icidência Rasante

A refletividade de raios X (RRX) é uma técnica que nos fornece algumas informações físicas importantes dos filmes finos, entre elas: espessuras e densidade das camadas além das rugosidades interfaciais. É uma técnica que pode ser utilizada para o estudo de interfaces em filmes finos com $d_{filme} < 50 \text{ nm}$, com um erro estimado em torno de 5 – 10% [101]. As medidas dos padrões de RRX foram também realizadas no difratômetro Ultima IV [Fig.3.4(a)], agora com uma varredura de $0,2 - 2^\circ$ com um passo de $0,02^\circ$. As simulações dos padrões de RRX foram obtidas usando o código DYNA, desenvolvido no instituto Néel, em Grenoble, França [102]. O código DYNA utiliza um formalismo no qual os parâmetros-chave são aqueles que definem o índice de refração e absorção linear como função de profundidade (parâmetros do material analisado) e aqueles que definem as características do feixe incidente (parâmetros instrumentais). Como principais resultados das medidas de RRX foram obtidas as espessuras das camadas individuais e suas rugosidades interfaciais dos filmes de Nb com $d_{Nb} = 20 \text{ nm}$ e dos filmes simples de cada um dos alvos usados para a calibração das taxas de deposição.

3.4 Caracterização Magnética: Método MAV

Antes de falar do processo dos processos de medidas magnéticas e de transporte elétrico, serão tecidas algumas informações básicas sobre o equipamento *Physical Properties Measurement System (PPMS) Evercool-II*, utilizado neste trabalho de tese. O PPMS (Fig. 3.5) é um equipamento versátil e multimodular, ou seja, o PPMS/UFES possui vários módulos de medidas: magnetização AC e DC, Resistividade elétrica, Calor específico, Ressonância Ferromagnética. Por possuir um miniliquefator de hélio (3 litros de He líquido por dia) e operando com a tecnologia *Evercool-II* da Quantum Design, o PPMS permite (i) aplicação de campos magnéticos de até 9 T, gerados por uma bobina supercondutora imersa no tanque do miniliquefator de He e (ii) temperaturas na região da amostra entre 1,8 e 1000 K, dependendo do módulo de medida.

O campo magnético aplicado \vec{B} tem direção ao longo da bobina e dependendo do módulo e a possibilidade de colocar a amostra para um dado

módulo, duas configurações de campo podem ser obtidas: no plano (\parallel) e perpendicular (\perp) ao plano de filmes (Fig. 3.6). Além disso, medidas angulares [direção fixa do campo \vec{B} e variando no plano a posição de uma referência da amostra (Fig. 3.6 - imagem da esquerda)] também são possíveis, principalmente no módulo de transporte elétrico. Neste trabalho, foram utilizados os módulos de magnetometria de amostra vibrante (MAV) [103-105] e de transporte elétrico funcionando no método de quatro pontas do PPMS.

O método MAV foi baseado naquele reportado por Foner [103-106], onde uma força eletromotriz ε é induzida em uma bobina captadora quando uma amostra de magnetização M é vibrada no interior desta bobina. Esta força ε , quando calibrada com um material conhecido, converte a magnetização medida em um valor conhecido em unidades eletromagnéticas (emu).

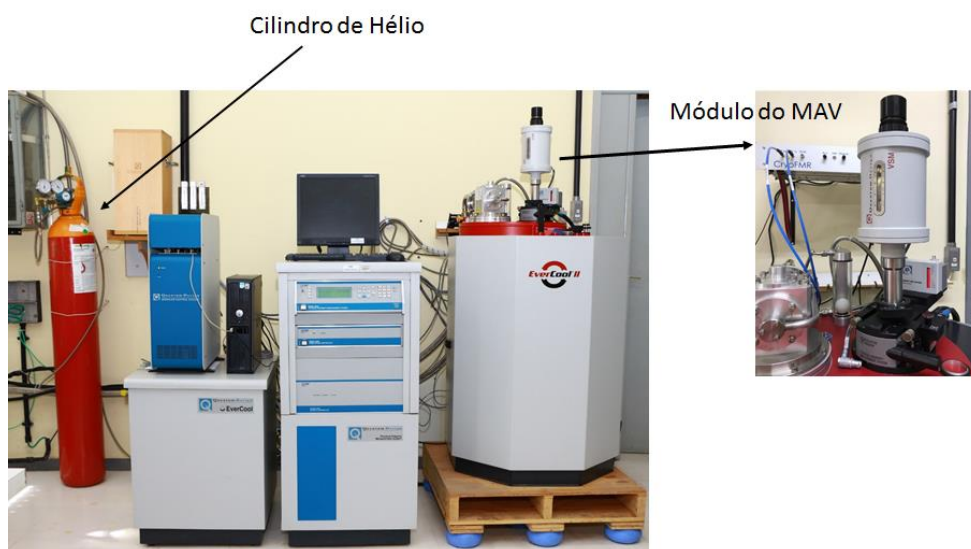


Figura 3.5: Imagens do equipamento PPMS *Evercool*-II fabricado pela Quantum Design Inc. e operando no LEMAG. Na parte ampliada (imagem à direita) é mostrado, em destaque, o módulo MAV.

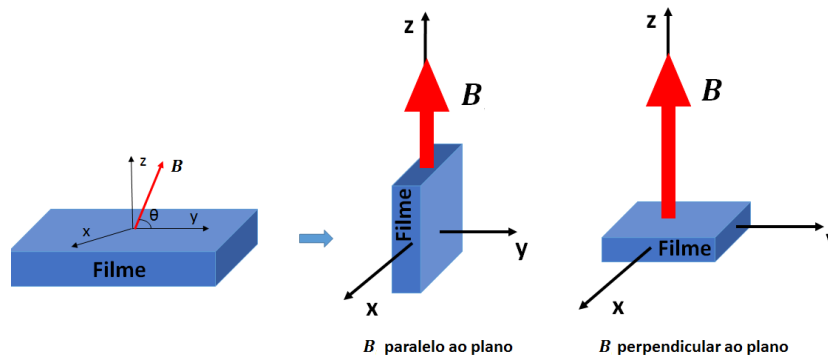


Figura 3.6: Esquema ilustrativo das medidas com campos magnéticos aplicados (B) para um ângulo θ qualquer relativo ao plano do filme (imagem da esquerda) e para as duas configurações principais: paralelo (\parallel - imagem central) e perpendicular (\perp - imagem da direita) ao plano do filme.

Em particular, foram realizadas medidas de magnetização em função do campo aplicado [curvas $M(B)$] nas configurações no plano (\parallel) e perpendicular (\perp) ao plano de filmes (Fig. 3.6) e com a amostra mantida em três temperaturas distintas: 300 K, 10 K e 3 K. Em 3 K, a camada de Nb está no estado SC, mas em 10 e 300 K o sinal dominante nas curvas $M(B)$ é o das camadas FM (Py e/ou Co). Foram também obtidas medidas de magnetização versus temperatura [curvas $M(T)$] para o estudo das propriedades magnéticas da camada SC de Nb, onde foram obtidos os valores da temperatura T_C e campos críticos (H_{C1} e H_{C2}) dos filmes de Nb com diferentes espessuras. Para medidas $M(B)$ do Nb em baixas temperaturas ($T < T_C$), somente medidas na configuração perpendicular (\perp) ao plano de filme foram feitas.

É importante dizer que durante as medidas das propriedades supercondutoras do Nb (T_C , H_{C1} e H_{C2}), a bobina do PPMS (geradora de campos \vec{B}) era zerada no módulo de campos oscilantes. Em outras palavras, em 10 K, um campo de 500 Oe era aplicado e reduzido em modo de campo oscilante para reduzir, ao máximo possível, qualquer campo remanente na bobina supercondutora (este processo foi realizado para evitar criação de vórtices nos filmes SC de Nb criados por um possível campo remanente alto da bobina supercondutora). Entretanto, foi previamente determinado que sempre havia um campo residual da ordem de 20 Oe na bobina supercondutora do PPMS [36]. Este valor de 20 Oe é inferior ao primeiro campo crítico H_{C1} das camadas de Nb, que foi da ordem de 100 Oe [36]. Feito esse processo de redução do campo

remanente da bobina era feito sempre em 10 K, para em seguida a temperatura da amostra ser baixada até 2 K (em geral todas as medidas começavam nesta temperatura).

3.5 Medidas de Transporte Elétrico: Método de 4 pontas

A caracterização com medidas de resistência elétrica (R) traz informações sobre o tipo de material (semicondutor, condutor, supercondutor, isolante), de portadores de carga e dos efeitos de dimensionalidade no transporte elétrico [107-109]. Enquanto nos materiais supercondutores há um marcante comportamento da resistividade elétrica com a temperatura [$R(T)$], com uma queda abrupta do valor de R na temperatura crítica de transição supercondutora (T_c) (vide Apêndice A, Fig. A.1), em metais $R(T)$ tem um comportamento linear com aumento da temperatura. Entre os métodos de medidas de $R(T)$, o mais usado, em filmes finos, é o de quatro (4) pontas [110-111]. É um método parcialmente destrutivo, pois as pontas precisam penetrar pela camada dos filmes, mas tem como principais vantagens a praticidade experimental e o fato de não ser necessário um excelente contato ôhmico entre o eletrodo e a amostra (as pontas penetram nas camadas dos filmes, logo o contato é por “pressão”).

Na Fig. 3.7 está esquematicamente apresentado o princípio do método, onde quatro eletrodos são organizados linearmente e paralelamente entre si. A corrente i é injetada através de dois eletrodos externos (1 e 4), enquanto os dois eletrodos (2 e 3) internos medem a queda de tensão proveniente do filme.

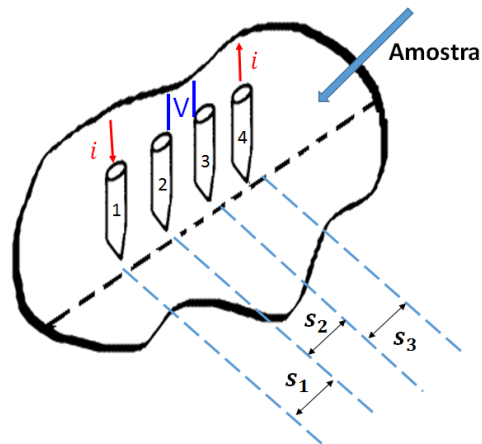


Figura 3.7: Esquema experimental para geometria do método de 4 pontas empregada na medida de resistividade elétrica em função da temperatura T e do campo aplicado B .

No caso em que as pontas são dispostas com espaçamentos variados sobre uma superfície quase-infinita, a resistividade elétrica (ou a resistência a menos do fator geométrico que as acoplam) é dada por:

$$\rho = \frac{2\pi(V/i)}{\left[\frac{1}{s_1} + \frac{1}{s_3} - \frac{1}{(s_1 + s_2)} - \frac{1}{(s_2 + s_3)}\right]} \quad (3.1)$$

onde s_1 , s_2 e s_3 são os espaçamentos entre as pontas e V e i são respectivamente a tensão medida e a corrente injetada no filme.

Em particular, medidas de resistência elétrica em função da temperatura e do campo aplicado $[R(T,B)]$, chamadas de magnetoresistência, foram feitas para todos os filmes que continham camadas supercondutoras de Nb. Estudo da dependência angular das curvas de $R(T,B,\theta)$, para cada campo fixo, foi realizado para diferentes direções entre o campo aplicado (B – fixo e vertical) e o plano do filme, conforme esquema mostrado na Fig. 3.8.

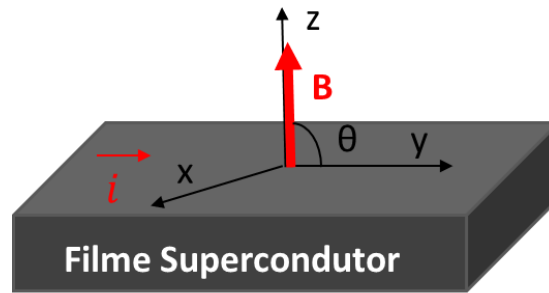


Figura 3.8: Esquema representando as configurações da direção variável do campo aplicado (B), a corrente elétrica (i) fixa no plano do filme durante as medidas angulares de $R(T, B)$. O ângulo θ é definido entre o plano do filme e a direção de B , sendo zero para configuração no plano (\parallel), 90° para configuração perpendicular (\perp) ao plano do filme e 180° para a configuração antiparalela (anti- \parallel) entre campo e corrente elétrica no plano.

Imagens do módulo de medida de transporte do PPMS são apresentadas na Fig. 3.9, onde se destaca o *puck* construído no LEMAG para medidas de filmes finos. Esse *puck* é construído com quatro pinos de Au, com molas internas que ajustam suas alturas relativas ao plano da amostra [Fig. 3.9(a) nº 2]. É também mostrado a vareta com o goniômetro [Fig. 3.9 (c)], que permitiu girar a amostra relativamente ao campo B , cujo direção fica ao longo do comprimento da vareta. As medidas de dependência angular das curvas $R(T, B)$ foram feitas entre zero [configuração no plano (\parallel) do filme – Fig. 3.9 (b) - superior] até 180° [configuração antiparalela (anti- \parallel)], passando pela configuração de 90° [configuração perpendicular (\perp) – Fig. 3.9 (b) inferior]. Para as medidas das diferentes curvas $R(T, B, \theta)$, a corrente elétrica DC de 2 mA foi sempre aplicada no plano da amostra e na mesma direção. O intervalo de temperatura de medida foi de 2 até 10 K, acima da qual a camada de Nb já se encontrava no estado condutor normal (estado metálico). Em cada medida com campo B , um campo de 500 Oe era aplicada em 10 K e reduzido no modo oscilante, isso para reduzir o campo remanente da bobina supercondutora antes de reduzir a temperatura da amostra até 2 K. O valor máximo de B foi de 4 T na configuração de campo B_{\parallel} e 1,5 T na configuração de campo B_{\perp} . As medidas de resistividade $R(T, B, \theta)$ foram feitas em pequenas partes das amostras dos filmes em forma de paralelepípedos [Fig. 3.9 (b)].

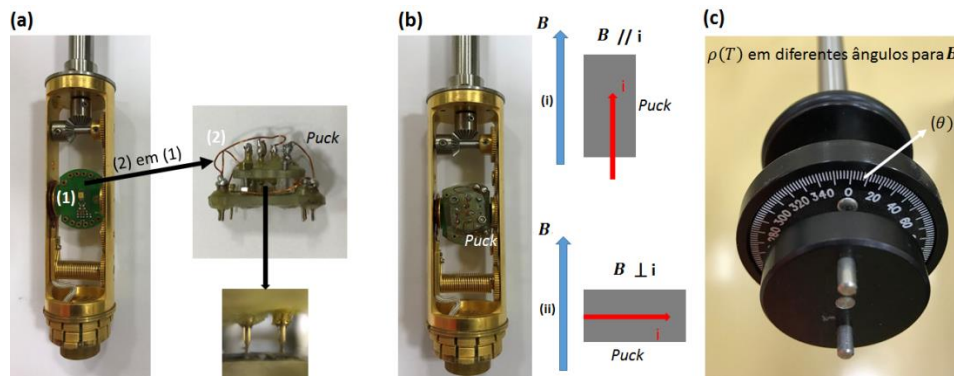


Figura 3.9: Geometria das medidas de resistividade elétrica dos filmes supercondutores: (a) dispositivo de quatro pontas acoplado no módulo de resistividade do sistema PPMS, (b) configuração das medidas com o campo magnético aplicado paralelo (i) e perpendicular (ii) ao plano da amostra e (c) método utilizado para medidas em função do ângulo.

Com as curvas $R(T, B, \theta)$, foram determinados os diferentes valores da temperatura de transição supercondutora (T_c) obtidas nas duas configurações de campos magnéticos aplicados, inclusive paralelo [$T_{c//} \rightarrow B_{//}$] e perpendicular [$T_{c\perp} \rightarrow B_{\perp}$] ao plano do filme para o entendimento do comportamento das propriedades supercondutoras da camada de Nb (oriundas do T_c) em função do campo magnético efetivo $B_{ef} (= B + B_{FM})$ e do ângulo θ ; ângulo este entre o B_{ef} e o plano do filme (trouxe informação da influência da estrutura magnética das camadas FM sobre as propriedades supercondutoras).

Na Fig. 3.10 é apresentada uma curva $R(T)$ hipotética usada para descrever o método aplicado para definir os valores T_c a partir das curvas $R(T, B, \theta)$. Primeiro, é tomado a derivada de $R(T)$ com relação a temperatura [$(\frac{\partial R(T)}{\partial T})_{\theta, B}$]. Como pode ser visto na Fig. 3.10 (b), a curva apresenta um pico definido. Este pico é referente ao ponto de inflexão da curva $R(T)$ e será então tomado como o valor de T_c . A incerteza no valor de T_c (δT_c) é definida como a metade da largura a meia altura (FWHM) da curva $(\frac{\partial R(T)}{\partial T})_{\theta, B}$, conforme sugere Fig. 3.10(c).

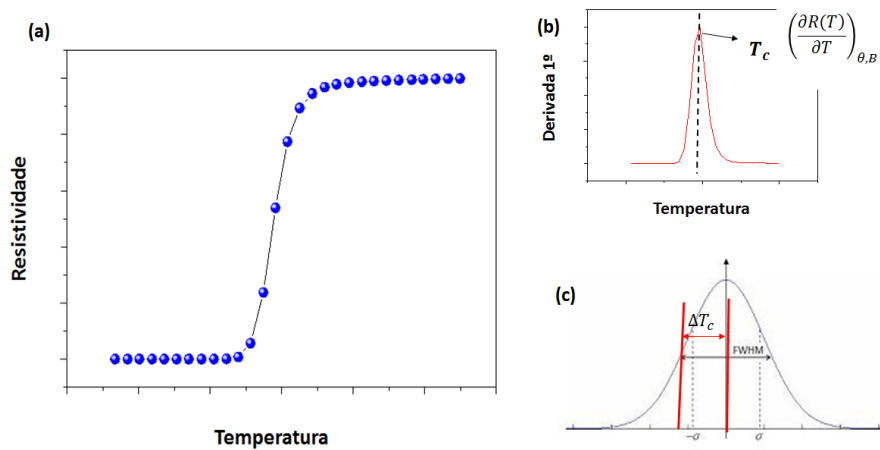


Figura 3.10: Método utilizado na determinação de T_c dos filmes de Nb: (a) curva representativa de resistividade em função da temperatura $R(T)$, (b) curva da derivada primeira de $R(T)$ e (c) curva ilustrativa de FWHM para obtermos o parâmetro de incerteza das medidas ΔT_c .

Capítulo 4

Abordagem Teórica e os Resultados Experimentais

4.1 Modelo Teórico: Uma Nova Abordagem para Determinação do Valor do Campo Magnético Disperso (*Stray Field*) da Camada Ferromagnética (B_{FM})

Conforme apresentado no Capítulo 2, o efeito de proximidade, que ocorre em interfaces de sistemas híbridos SC/FM, tem sido assumido como sendo o responsável pela redução observada no valor de T_C do estado SC de sistemas VSS. Por isso, esse efeito é também conhecido como efeito válvula de spin supercondutor (redução adicional no valor de T_C provocada pela mudança da magnetização da camada FM).

Nesta seção, usando a teoria fenomenológica de Ginzburg-Landau modificada para um SC anisotrópico, uma grandeza física é definida e uma discussão no que tange o limite de sua aplicação é apresentada. Essa grandeza é então usada nos dados experimentais (obtidos nesta tese) para obter informações do campo magnético disperso (*stray field*) da camada FM que age sobre a camada SC de Nb (como o campo efetivo experimentado pelo filme SC). O campo magnético disperso é uma grandeza física dificilmente mensurada na literatura científica e os livros básicos de teoria eletromagnética e magnetismo o calculam assumindo várias hipóteses que não são experimentalmente obtidas (são aproximações de 1ª ordem).

Em outras palavras, definindo uma nova grandeza física, a partir do modelo de GL, será possível extrair diretamente a magnitude do campo magnético disperso da camada FM (quantificar o valor do campo na ausência de campo magnético aplicado) e indiretamente, entender o efeito da distribuição de domínios magnéticos da camada FM (que cria o campo magnético disperso) no efeito VSS encontrado em sistemas híbridos SC/FM. Adicionalmente, ao testar os dados experimentais usando a nova grandeza é possível compreender o limite do caráter anisotrópico observado em filmes finos de sistemas SC e híbridos SC/FM.

Cabe inicialmente ressaltar que o efeito anisotrópico em supercondutores está bem documentado na literatura científica [18,45,15]. Em geral, fatores fenomenológicos do modelo de Lawrence-Doniach (LD) têm sido utilizados para explicar propriedades SC de materiais 2D. Em particular, o modelo LD utiliza uma abordagem simples para lidar com o fato de que em materiais SC, que apresentam comportamentos bidimensionais (2D), a anisotropia de massa impõe que o comprimento de coerência ξ também deva ser anisotrópico. Dessa maneira, as propriedades físicas dos materiais 2D SC dependem fortemente da direção do campo magnético efetivo (\vec{B}_{ef}) atuando no material. Ademais, o modelo LD pode ser reduzido à teoria anisotrópica de GL para temperaturas próximas a T_C do estado SC. Logo, no limite anisotrópico e em temperaturas próximas ao valor de T_C , o modelo anisotrópico GL continua sendo um bom ponto de partida para explicar muitas propriedades físicas dos materiais SC. Dois casos específicos são bem descritos na teoria anisotrópica de GL [15,109]. O primeiro caso é aquele no qual o campo magnético é aplicado perpendicular ao plano da amostra (\vec{B}_\perp), tal que o campo crítico superior $B_{c2\perp}$ seja descrito pela Eq. (2.2) e aqui repetida na forma:

$$B_{c2\perp}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_\perp^2(T)} \quad (4.1)$$

onde, o parâmetro $B_{c2\perp}$ representa o campo crítico superior definido na geometria de campo aplicado perpendicular ao plano do filme, ξ_\perp é o comprimento de coerência perpendicular ao plano no filme (paralelo a direção do campo \vec{B}_\perp) e Φ_0 é o fluxo quântico.

O segundo caso trata da configuração de campo magnético aplicado paralelo ao plano do filme (\vec{B}_\parallel), onde o campo crítico superior ($B_{c2\parallel}$) é expresso como:

$$B_{c2\parallel}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_\perp(T)\xi_\parallel(T)} \quad (4.2)$$

o $\xi_{||}$ é o comprimento de coerência do par de Cooper paralelo ao plano do filme. A seguinte condição foi experimentalmente verificada: $B_{C2\perp} < B_{C2||}$ nos filmes SC de Nb, como será mostrada adiante. Essa observação concorda com a característica anisotrópica de materiais SC do tipo 2D [$\xi_{\perp}(T) > \xi_{||}(T)$], como é o caso de filmes finos de Nb [15,39].

Os resultados discutidos no Capítulo 2 (Fig. 2.2) sugerem que o campo crítico superior tem uma dependência específica com a variação da temperatura [$B_{C2}(T)$], logo há de se esperar que haja também uma dependência ξ com a temperatura [$\xi_{\perp}(T)$]. Portanto, usando a aproximação de campo médio onde é demonstrado que [8,115]: $\xi_{\perp}(T) = \frac{\xi_0}{(1-\frac{T}{T_C})^{\frac{1}{2}}}$, onde ξ_0 é o comprimento de coerência característico em $T = 0 K$ e T_C é a temperatura de transição SC tomada em campo magnético nulo, a Eq. (4.1) é reescrita como:

$$B_{C2\perp}(T) = B_{C2\perp}(0) \left(1 - \frac{T}{T_C}\right) \quad (4.3)$$

Onde $B_{C2\perp}(0) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_0^2}$

Reorganizando a Eq. (4.1), a mesma é reescrita para o comportamento de T_C em função de B [$T_C(B)$], já que a quantidade mensurada experimentalmente, com maior facilidade, é exatamente T_C . Então, a Eq. (4.4) rearranjada fica:

$$T_{C\perp}(B) = T_{C\perp}(0) \left(1 - \frac{B}{B_{C2\perp}(0)}\right) \quad (4.4)$$

Na Eq. (4.4), $T_{C\perp}(B)$ é a temperatura crítica de transição supercondutora registrada para qualquer valor de campo magnético aplicado perpendicular ao

plano do filme (configuração de campo B_{\perp}), enquanto que $T_{c\perp}(0)$ e $B_{c2\perp}(0)$ são respectivamente a temperatura crítica tomada em campo magnético nulo e o campo crítico superior em $T = 0 K$. A Eq. (4.4) sugere que $T_{c\perp}$ varie linearmente com o campo magnético aplicado \vec{B} na configuração de campo B_{\perp} . Esse comportamento é experimentalmente verificado em vários estudos reportados na literatura científica para sistemas supercondutores [15,45,109].

Para o segundo caso ($B_{c2\parallel}$), como a espessura do filme é reduzida, o valor de $\xi_{\parallel}(T)$ limitado pelo tamanho físico do material [seu valor é limitado pela espessura do filme (d_{sc})]. Neste caso, é esperado que $T_{c\parallel}(B)$ tenha o comportamento governado pela Eq. (4.5) [15,45,109]:

$$T_{c\parallel}(B) = T_{c\parallel}(0) \left(1 - \frac{B^2}{B_{c2\parallel}^2(0)}\right) \quad (4.5)$$

$$\text{Onde } B_{c2\parallel}(0) = \frac{\Phi_0}{2\pi d \xi_0}$$

Na Eq. (4.5), $T_{c\parallel}(B)$ é a temperatura crítica determinada para qualquer valor de campo magnético aplicado na configuração de campo paralelo (B_{\parallel}) ao plano da amostra, $T_{c\parallel}(0)$ é a temperatura crítica correspondente a medida com campo magnético zero e $B_{c2\parallel}(0)$ é o campo crítico superior em $T = 0 K$.

As Equações (4.4) e (4.5) têm sido frequentemente usadas, com sucesso, na literatura para descrever dados experimentais de filmes finos SC. Aproveitando essa constatação experimental das relações fenomenológicas acima, a grandeza física ΔT_c (vide abaixo) é definida neste trabalho para descrever (i) os comportamentos de $T_c(B)$ [$T_{c\parallel}(B)$ e $T_{c\perp}(B)$] de filmes finos puros de Nb de duas espessuras distintas e de seus sistemas híbridos SC/FM e (ii) indiretamente fornecer o campo disperso de camadas FM e a influência da distribuição de domínios magnéticos das camadas FM sobre as propriedades SC de filmes de Nb. Certamente, os itens (i) e (ii) são algumas das principais contribuições científicas dessa tese de doutorado, principalmente pelo fato de que o campo magnético disperso é dificilmente reportado na literatura no caso

de filmes FM e é desconhecido valores para o caso de filmes híbridos SC/FM, como os estudados neste trabalho.

O parâmetro ΔT_C é tomado como sendo a diferença entre $T_{C\parallel}$ e $T_{C\perp}$, ou seja, $\Delta T_C = T_{C\parallel} - T_{C\perp}$. Tomando as equações acima para $T_{C\perp}$ [Eq. (4.4)] e $T_{C\parallel}$ [Eq. (4.5)], a seguinte expressão matemática é escrita para ΔT_C :

$$\Delta T_C(B) = T_C(0) \frac{B}{B_{C2\perp}(0)} \left[1 - \frac{1}{\gamma} \left(\frac{B}{B_{C2\parallel}(0)} \right) \right] \quad (4.6)$$

Na Eq. (4.6), $T_C(0)$ representa a temperatura crítica na ausência de campos, $\gamma = \frac{B_{C2\parallel}(0)}{B_{C2\perp}(0)}$ é o coeficiente de anisotropia (sem dimensão) e \vec{B} é o campo magnético aplicado nos sistemas SC puros ou híbridos SC/FM.

Uma análise da Eq. (4.6) pode trazer comportamento mais genéricos que, por sua vez, podem ser experimentalmente testados ao obter um conjunto de medidas de $R(T, B)$ nas duas configurações de campos aplicados ($[T_{C\parallel} \rightarrow B_{\parallel}]$ e $[T_{C\perp} \rightarrow B_{\perp}]$). Por um lado, é possível notar que para um valor pequeno do termo entre colchetes na Eq. (4.6), mas não insignificante valor $\frac{1}{\gamma} \left(\frac{B}{B_{C2\parallel}(0)} \right)$, essa equação pode ser reescrita na forma da Eq. (4.7), onde foi usada a aproximação $e^{-x} \approx 1 - x$, quando $x \ll 1$:

$$\Delta T_C(B) = T_C(0) \frac{B}{B_{C2\perp}(0)} e^{-\left(\frac{1}{\gamma} \frac{B}{B_{C2\parallel}(0)} \right)} \quad (4.7)$$

Entretanto quando $\frac{1}{\gamma} \frac{B}{B_{C2\parallel}(0)} \ll 1$ ainda na Eq. (4.6), a mesma pode ser reescrita, desprezando o termo dentro do colchetes após a unidade $\left(\frac{1}{\gamma} \frac{B}{B_{C2\parallel}(0)} \approx 0 \right)$, tal que a Eq. (4.6) possa ser escrita da seguinte forma:

$$\Delta T_c(B) = T_c(0) \frac{B}{B_{c2\perp}(0)} \quad (4.8)$$

A Eq. (4.8) sugere um comportamento linear para $\Delta T_c = T_{c\parallel} - T_{c\perp}$ com o campo magnético efetivo na amostra SC.

Neste momento, cabe definir a grandeza física do campo magnético efetivo (\vec{B}_{ef}), já que nesta tese serão trabalhados filmes híbridos SC/FM de diferentes configurações ferromagnéticas, ou seja, o campo magnético sentido na camada SC sempre será um campo \vec{B}_{ef} dado pela soma vetorial do campo aplicado com os campos magnéticos dispersos das camadas FM [$\vec{B}_{FM}(i)$, i representa as camadas FM individuais], além da contribuição da magnetização induzida no caso da camada SC de Nb (contribuição oposta ao campo aplicado). Em primeira aproximação entretanto é assumido que: $\vec{B}_{ef} = \vec{B} + \vec{B}_{FM}(i)$, onde $\vec{B}_{FM}(i)$ é o campo disperso gerado por cada uma das camadas FM sobre o material SC [sistemas híbridos do tipo SC/FM1; SC/FM2 ou SC/FM1/FM2].

As Equações (4.7) e (4.8) podem ser primeiramente testadas no caso de filmes finos SC puro, com grau de anisotropia induzida pela espessura do filme de Nb (d_{Nb}), para obtenção de algumas características supercondutoras fundamentais dos filmes de Nb. Elas também são aplicadas para obter informações do campo magnético disperso das camadas FM e/ou da influência da distribuição de domínios ferromagnéticos sobre a supercondutividade (o campo disperso e a distribuição de domínios mudam com a aplicação de campo magnético B).

Para informação da influência da mudança dos domínios FM sobre as propriedades SC, será necessário a realização de medidas de $\Delta T_c(B)$ variando o ângulo de aplicação do campo B com relação ao plano do filme, tal que curvas de $\Delta T_c(B, \theta)$ possam trazer informações das mudanças de domínios FM sobre a supercondutividade. Este tipo de medida nos dará indiretamente informações do efeito VSS e do campo magnético disperso, que estão presentes nas heteroestruturas Nb/Cu/Py/Cu/Co também preparadas e estudadas nesta tese.

4.2 Resultados Experimentais dos Filmes Finos de Controle SC de Nb

Os resultados experimentais das caracterizações estruturais, magnéticas e de magneto-transporte dos filmes finos puros de Nb ($d_{Nb} = 20$ e 100 nm) serão primeiramente apresentados e discutidos. A seguinte notação simplificada será usada: Nb20 e Nb100, onde os números representam a espessura do filme em nanômetros (nm). Os filmes foram caracterizados segundo seus tamanhos médios de grãos cristalinos (τ), parâmetros de rede (a) da fase do Nb, rugosidades (σ) e espessuras calculadas (d). Como dito no Capítulo 3, os filmes finos Nb crescidos diretamente sobre o substrato de Si (100) pelo método de *Magnetron Sputtering* DC apresentam caráter granular e os tamanhos de grãos modificam suas propriedades SC. Será demonstrado que os filmes de Nb (camada simples ou híbridas) apresentam características granulares similares entre si, o que garante que o campo magnético disperso será a principal fonte de mudança adicional nos valores de T_C dos filmes SC de Nb nos sistemas híbridos.

4.2.1 Caracterização Estrutural dos Filmes Finos Controles SC de Nb (d_{Nb})

Os filmes de Nb20 e Nb100 foram preparados com $T_S = 100$ °C. Nenhuma camada semente (*Buffer layer*) e/ou camada protetora (*Capping layer*) foi utilizada. Logo, os filmes de Nb foram diretamente depositados sobre o substrato de Si(100) e como as medidas foram realizadas *ex-situ*, uma possível camada de óxido de Nb não pode ser descartada (filmes são estáveis por mais de 6 meses, conforme testes tomando como base o valor de T_C). Filmes cobertos com uma camada de Cu também apresentaram propriedades similares a que serão apresentadas nas seções seguintes, indicando que a cobertura, por exemplo, não altera o valor de T_C dos filmes de Nb.

Os padrões de difração de raios X (DRX), mostrados na Fig. 4.1 (a) e (b), não evidenciam a presença de picos de Bragg de uma possível fase do óxido de Nb. Entretanto, conforme relatado por Freitas [36], um possível processo de oxidação superficial de algumas monocamadas de Nb é fundamental para

passivar o processo e manter o filme de Nb com suas propriedades supercondutoras do processo de preparação por vários meses. Em particular, esses padrões de DRX (geometria GIXRD) só possuem o pico mais intenso de Bragg no intervalo angular de 2θ entre 34° e 46° , que corresponde ao pico de Bragg (110) da estrutura BCC do Nb. Nenhum estudo de textura cristalina foi realizado nos filmes e a presença somente deste pico de Bragg não garante que a camada de Nb tenha crescido texturizada. De fato, Tales [36], em estudo prévio, demonstrou que os filmes de Nb crescidos por *Magnetron Sputtering* sobre Si (100) são policristalinos.

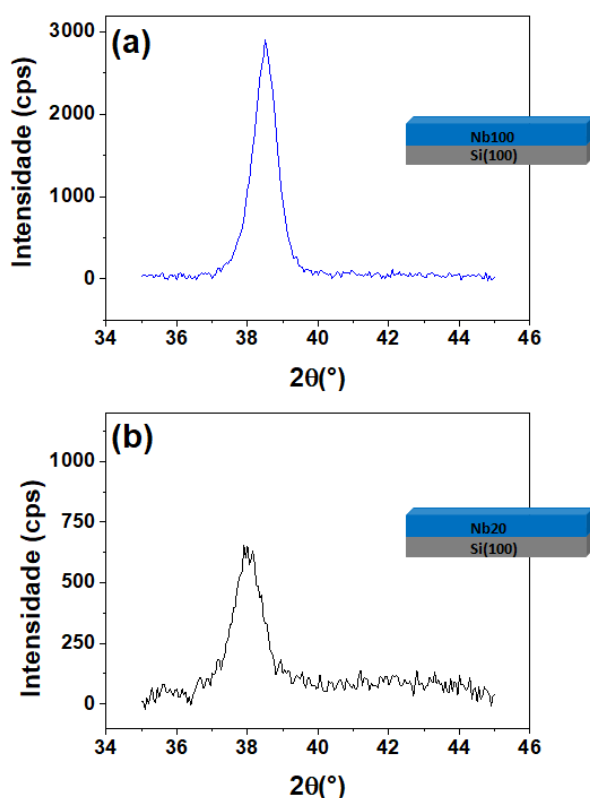


Figura 4.1: Padrões DRX tomados à temperatura ambiente para os filmes de (a) Nb100 e (b) Nb20.

Por outro lado, é possível notar que os picos de Bragg dos dois filmes (Nb20 e Nb100) estão em posições angulares distintas, indicando diferentes parâmetros de redes para a fase BCC do Nb. Usando a Lei de Bragg para difração, após ajustes dos picos de Bragg com função lorentziana para encontrar as posições angulares, os parâmetros de rede (a) dos filmes de Nb foram

respectivamente calculados e estão dispostos na Tabela 4.1. Os tamanhos de grãos (τ) destes filmes foram obtidos com medidas de difração de raios X convencional (Bragg-Brentano) e também são apresentados na Tabela 4.1

Tabela 4.1: Valores dos tamanhos médios de grãos cristalinos (τ) e dos parâmetros de rede (a) obtidos dos padrões GIXRD dos filmes de Nb(d_{Nb}).

Amostra	Tamanho de Grão (τ) (nm)	Parâmetro de Rede (a) (nm)
Si(100)/Nb(20nm)	$7,2 \pm 0,3$	$0,3333 \pm 0,0005$
Si(100)/Nb(100nm)	$9,9 \pm 0,2$	$0,3327 \pm 0,0003$

Conforme reportado na literatura, o parâmetro de rede da fase BCC do Nb *bulk* é $a = 0,3303$ nm [42]. Ambos os valores dos parâmetros de rede dos filmes Nb20 ($a = 0,3333$ nm) e Nb100 ($a = 0,3327$ nm) são maiores do que o valor de *bulk* do Nb, indicando que os filmes de Nb crescidos sobre o Si estão ligeiramente tensionados, sendo que a tensão na camada de Nb é maior no filme mais fino (Nb20).

O efeito tensão é, pelo menos, um dos motivos pelo qual o valor de T_c dos filmes de Nb (crescidos sobre Si) é significativamente reduzido quando comparado com seu valor de *bulk* de $T_c = 9,2$ K. Outro fator importante que influencia no valor de T_c dos filmes de Nb é o tamanho de grão cristalino, que está correlacionado com a espessura [36]. Dos dados da Tabela 4.1, é nítido que o valor de τ (obtido do pico principal de Bragg da fase do Nb) diminui à medida que a espessura do filme (d_{Nb}) decresce. Em consequência, o filme de Nb20 deve apresentar um menor valor de T_c , não só pelo efeito de dimensionalidade da camada, mas também pelo efeito de tensão interna da camada (maior parâmetro de rede comparado com o valor do *bulk*) e da redução no tamanho de grão cristalino.

Como a dimensionalidade dos filmes SC impacta no valor de T_c dos filmes, um entendimento da formação de uma camada de óxido de Nb nos filmes descobertos (oxidação é como se houvesse uma redução do valor de d_{Nb}) e, conseqüentemente no valor de T_c são fundamentais para o desenvolvimento deste trabalho (os resultados dos filmes puros serão usados como referência).

Em primeiro lugar, cabe enfatizar que medidas realizadas algumas semanas após a produção dos filmes apresentam propriedades semelhantes às aquelas obtidas logo após os mesmos serem retirados da câmara de deposição do *Sputtering*, indicando que a oxidação, se ocorre, é superficialmente e mantém a grande fração do filme de Nb no estado metálico (o estado SC é obtido em baixas temperaturas). A existência ou não de uma fase de óxido de Nb nos filmes descobertos foi testada com medida de refletividade de raios X (difração em baixos ângulos) para o filme mais fino de Nb (Nb20), objetivando determinar a espessura efetiva da amostra, as rugosidades interfaciais, entre outras. O filme Nb100 tem uma espessura muito grande, que o inviabiliza para aplicação do método experimental de refletividade de raios X (grande imprecisão já que não aparecem franjas definidas nas curvas de refletividade de raios X). A curva experimental de refletividade de raios X, juntamente com o ajuste dos dados com o Programa Dyna, é apresentada na Fig. 4.2 para o filme Si/Nb20.

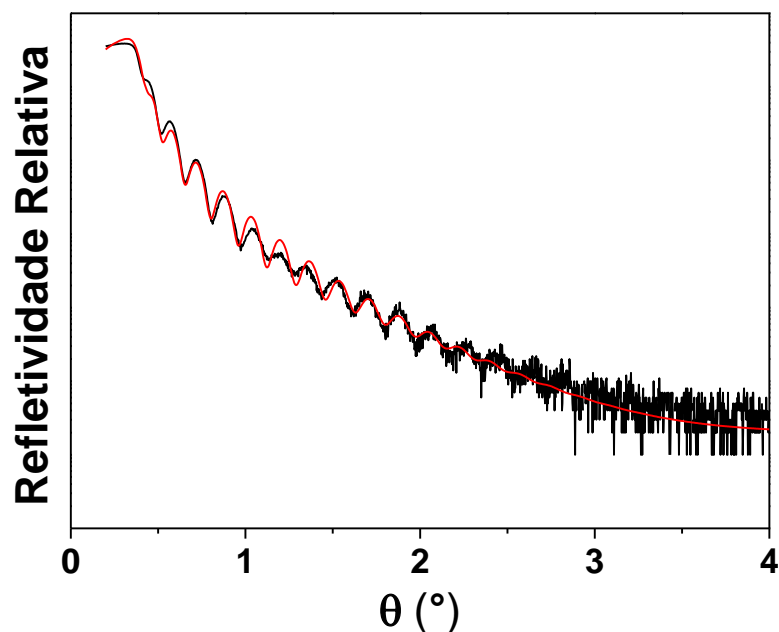


Figura 4.2: Curva de refletividade do filme Si/Nb20 obtida à temperatura ambiente (linha preta). A linha vermelha corresponde ao resultado do ajuste dos dados experimentais usando o programa Dyna [102].

O ajuste dos dados experimentais de refletividade de raios X foi feito usando apenas um componente; Nb. Do ajuste, se determinou que o filme de Nb não apresentou nenhuma oxidação na superfície. Então, o filme Nb20 tem uma

espessura estimada de $(25,0 \pm 0,2)$ nm e rugosidade (σ) de $(0,4 \pm 0,2)$ nm, conforme resultado do ajuste usando o programa Dyna. A priori, é possível inferir que não houve interdifusão significativa de átomos de Nb na camada de Si (substrato). A interdifusão Nb/Si ocorre, em geral, quando $T_s > 100$ °C [36]. Com essa variação na espessura é possível assumir que os valores de T_c das camadas de Nb para espessuras de 25 ou 20 nm podem ser assumidos similares. Em conclusão, os valores de T_c a serem determinados abaixo serão assumidos iguais em todos os filmes desta tese já que apresentarão propriedades estruturais e morfológicas similares (filmes de Nb têm se mostrado bem reprodutíveis usando o *Sputtering Orion-8* instalado no LEMAG). Conseqüentemente, mudanças adicionais nos valores de T_c dos filmes de Nb dos sistemas híbridos SC/FM poderão ser efetivamente atribuídas a camada FM.

4.2.2 Caracterizações Magnética e de Transporte dos Filmes Finos Controles SC de Nb

Cabe inicialmente mencionar que as curvas $M(T)$ foram sempre tomadas em processo ZFC, com campo de prova de 3 mT e com a bobina supercondutora tendo o campo magnético zerado no modo oscilante (campo inicial na bobina de 0,05 T). As curvas $M(T)$ para os filmes Nb100 e Nb20 são respectivamente apresentadas na Figura 4.3 (a) e (b).

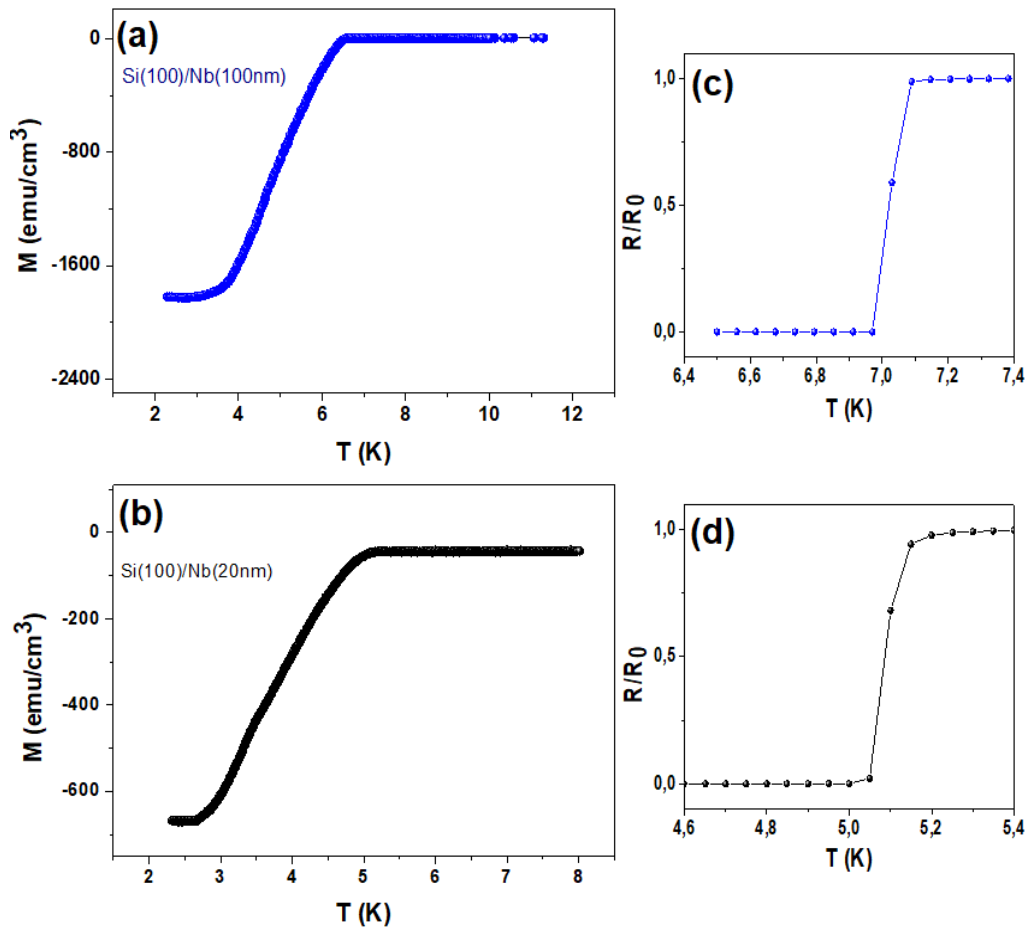


Figura 4.3: Curvas $M(T)$ dos filmes de Nb100 (a) e Nb20 (b) preparados em $T_S = 100$ °C. O campo de prova aplicado perpendicular ao plano do filme e com um valor de 3 mT. Curvas de $R(T)$ dos filmes (c) Nb100 e (d) Nb20 com campo aplicado zero na configuração perpendicular ao plano do filme ($B_{\perp} = 0$ T).

É possível observar da Fig. 4.3 (a) e (b) que as transições do estado supercondutor (SC) para o estado normal metálico (SC-N) dos filmes Nb20 e Nb100 são relativamente largas. Esta observação experimental sugere uma distribuição de valores de T_C que, por sua vez, deve estar associada com uma distribuição de tamanhos de grãos dos filmes de Nb (caráter granular já discutido e reportado [36]). A largura da transição SC-N (δ_{Nb}) é determinada como sendo a diferença entre o ponto onde a curva começa a apresentar o efeito diamagnético (*onset*) e o ponto em que atinge a saturação diamagnética. Os valores são: $\delta_{Nb20} = (2,6 \pm 0,2)$ K e $\delta_{Nb100} = (3,4 \pm 0,4)$ K, respectivamente. Esses valores de δ_{Nb} sugerem que os filmes possuem diferentes tamanhos de grãos dispersos na matriz SC e, também pelo efeito de tensão interna.

Dessa maneira, os filmes de Nb podem ser interpretados como sendo formados por um conjunto de grãos SC dispersos em uma matriz normal ou fracamente SC (supercondutores “sujos”). Isto nos leva a sugerir que haja concomitantemente duas fontes para a supercondutividade: (i) a contribuição intragranular e (ii) a contribuição intergranular. A intragranular está associada com as propriedades SC intrínsecas do material, inclusive tensões provocadas pela redução do tamanho de grão, conforme observado com as medidas de DRX. Já a contribuição intergranular é devida a regiões entre grãos vizinhos que, por sua vez, são denominadas de *weak-links (W-L)* [36]. Essa região W-L apresenta propriedades que são essencialmente decorrentes das características das ligações entre os grãos vizinhos, ou melhor, características extrínsecas do material que dependem muito das condições de preparação das amostras que, no caso dos filmes de Nb, são granulares quando crescidos sobre substrato de Si (sempre apresentaram esta contribuição como uma parte significativa) [43].

Por outro lado, na Figura 4.3 (c) e (d) são apresentadas curvas de resistência elétrica normalizadas [$R(B,T)/R(B=0T;T=10K)$ ou simplesmente $R(T)/R_0$] registradas em intervalos de temperaturas próximos aos respectivos valores de T_c dos filmes Nb100 e Nb20 (cada curva R/R_0 é referente a mesma amostra da curva de $M(T)$ apresentada ao lado). Desta figura, é nítida uma queda abrupta do valor da resistência elétrica, indicando a transição SC-N. Este tipo de medida traz uma percepção de uma transição SC-N mais estreita do que aquela definida com as medidas magnéticas [tomadas das curvas $M(T)$] para os filmes de Nb20 e Nb100.

Essa aparente discrepância no valor T_c e sua incerteza está associada com a maneira em que cada técnica “enxerga” a transição SC-N. Considerando então que (i) ambas as medidas $M(T)$ e $R(T)$ são tomadas de baixas para altas temperaturas (aquecimento após um protocolo de ZFC), (ii) as medidas magnéticas [curvas $M(T)$] sugerem uma distribuição larga nos valores de T_c e (iii) as medidas de transporte [curvas $R(T)$] sugerem uma distribuição bem estreita de T_c , é possível inferir, por um lado, que nas medidas de transporte elétrico, a corrente elétrica percola pelos grãos SC somente quando todo o filme está no estado SC (a grande maioria dos grãos estiverem na transição SC-N), ou melhor, quando somente os grãos SC menores (baixos valores de T_c)

estiverem transicionando não há percolação da corrente elétrica para se medir a transição SC-N e, portanto, quando todo o material estiver no estado SC (mais altas temperaturas), gera um caráter de transição mais estreita (todo o material). Por outro lado, as medidas magnéticas [curvas $M(T)$] mostram as diferentes contribuições da distribuição de tamanhos de grãos SC e/ou as contribuições dos valores de T_c intragranular e Intergranular dos grãos SC dos filmes de Nb [se mede principalmente as contribuições “individuais” dos grãos SC de tamanhos diferentes (distintos valores de T_c)].

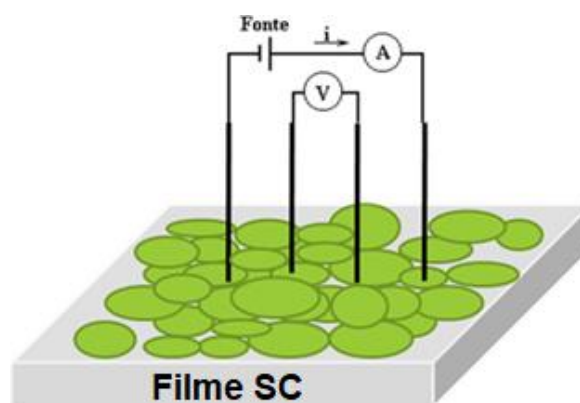


Figura 4.4: Esquemática para mostrar a medição de resistividade [$R(T)$] de filmes supercondutores pelo método de quatro pontas (descrito no cap. 3) na interação intergranular (interação entre grãos supercondutores vizinhos), onde as bolas verdes representam os grãos SC.

Como neste trabalho de tese de doutorado é buscado o entendimento do efeito de campos dispersos de camadas FM sobre as camadas SC e assumindo que na transição SC-N na camada SC (filme de Nb) está bem caracterizada, a partir de agora, serão somente discutidos os resultados de medidas curvas $R(T)$, ou seja, os valores de T_c dos filmes de Nb serão definidos, de agora em diante, a partir das respectivas curvas $R(T)$, tomando o máximo da sua primeira (1^a) derivada, que corresponde exatamente o ponto de inflexão da curva $R(T)$, enquanto que a incerteza no valor de T_c será tomada como a metade da largura a meia altura do máximo do pico da curva da 1^a derivada de $R(T)$. Para os filmes de Nb20 e Nb100, os valores de T_c são: $(5,0 \pm 0,1)$ K e $(6,9 \pm 0,2)$ K, respectivamente. Os filmes de Nb mais espessos possuem valores maiores de T_c , mas ainda assim menores do que o valor de *bulk* de 9,2 K reportado na

literatura [120]. Estes valores de T_c são confirmados nestas amostras replicadas, conforme será discutido na próxima seção.

Para finalizar a caracterização dos filmes de Nb puros, que serão tomados como referência no estudo dos sistemas híbridos Nb/FM, curvas $M(B)$ foram tomadas nos respectivos estados SC ($T < T_c$) e são apresentadas na Fig. 4.5 (a) e (b) respectivamente para os Nb100 e Nb20. Esses laços $M(B)$ são obtidos na configuração de campo B_{\perp} .

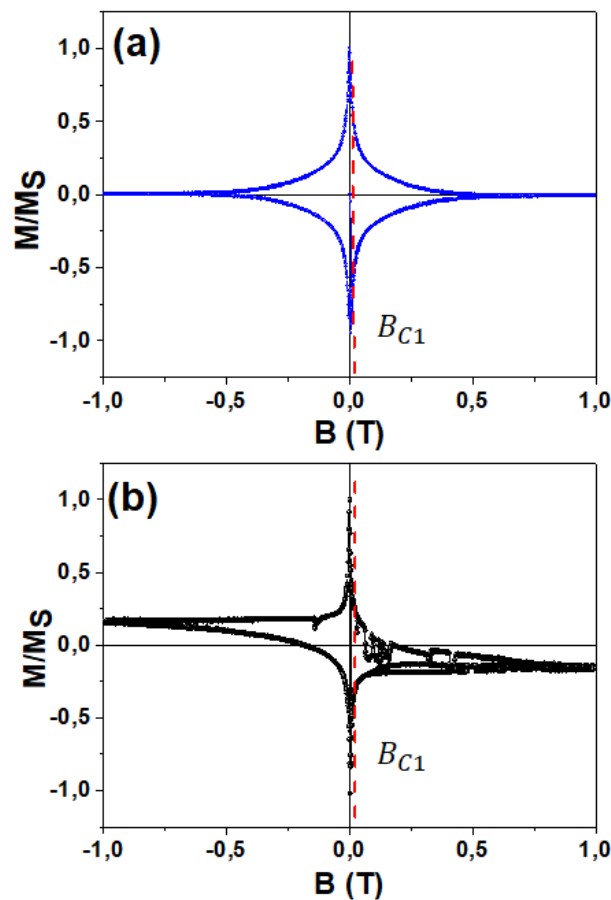


Figura 4.5: Curvas de $M(B)$ tomadas em 2 K com o campo magnético perpendicular aos planos dos filmes de Nb, em (a) filme de Nb100 e (b) Nb20. Critério de obtenção de B_{c1} ; com o aumento gradual da corrente da bobina é observado um aumento linear na resposta negativa da magnetização proporcional ao campo aplicado até o valor de B_{c1} e, o critério está sinalizado pela linha vermelha tracejada.

Os laços $M(B)$ desses filmes apresentam características marcantes de supercondutores do tipo-II (o formato típico de uma “estrela”), indicando que estados de vórtices podem ser gerados nos filmes de Nb20 e Nb100. Outro fator importante é que dependendo do valor de d_{Nb} , além de valores de T_c diferentes, há também mudanças nos valores de B_{c1} para os filmes produzidos, ou seja, sendo aproximadamente 5,4 mT para o filme Nb20 e 7,2 mT para o filme Nb100. Ademais, não foi possível inferir os valores de B_{c2} pelas curvas de $M(B)$, pois no intervalo de campo utilizado não houve interseção do laço inferior com o laço superior para ambas as amostras, como critério experimental utilizado.

4.2.3 Caracterização por Magneto-Transporte dos Filmes Finos Controles SC de Nb

Como dito acima, os resultados das propriedades supercondutoras (pelo menos, T_c) são reprodutíveis em amostras replicadas preparadas em tempos diferentes (intervalo de 20 meses). Na Figura 4.6 (a) Nb100 e (b) Nb20 são apresentados os resultados das duas curvas R/R_0 de duas amostras semelhantes dos filmes Nb20 e Nb100, assim como os valores de T_c (definidos como o ponto de inflexão das curvas de $R(T)$ - gráfico menor no canto direito das curvas em vermelho) e as incertezas do T_c (largura total na metade do máximo do pico). Como é possível notar das curvas de R/R_0 , todos os valores de T_c são muito próximos entre si das amostras de mesma espessura, indicando que há uma grande reprodução nos resultados e das propriedades supercondutoras (tamanhos de grãos e parâmetros de rede também são similares). Em alguns casos, foi feito até 3 réplicas de uma dada amostra.

Onde ocorreu de os valores de T_c entre as amostras replicadas serem maiores do que as incertezas tomadas pela largura à meia altura da medida, as incertezas nos valores de T_c foram tomadas como a diferença da média das medidas de T_c das amostras replicadas. Os filmes Nb100 têm um $T_c = (7,1 \pm 0,3) K$, enquanto que os filmes de Nb20 têm um valor de $T_c = (5,1 \pm 0,2) K$. É então constatado que realmente há um aumento no valor de T_c com o crescimento d_{Nb} ; efeito esse que está intrinsecamente correlacionado com o aumento do tamanho de grão cristalino, a redução da tensão interna da camada de Nb e a redução do efeito de dimensionalidade, já que nos filmes de 100 nm é

esperado que o material já tenha propriedades de *bulk* (caráter 3D). Cabe ainda dizer que a pequena diferença nos valores de T_c encontrada para os filmes Nb100 [Fig. 4.6(a)] pode ser justificada pelas desordens topológicas ocasionadas pelas tensionadas e/ou uma variação no tamanho de grão, mas essa variação no valor de T_c não é significativa para o que será discutido mais adiante.

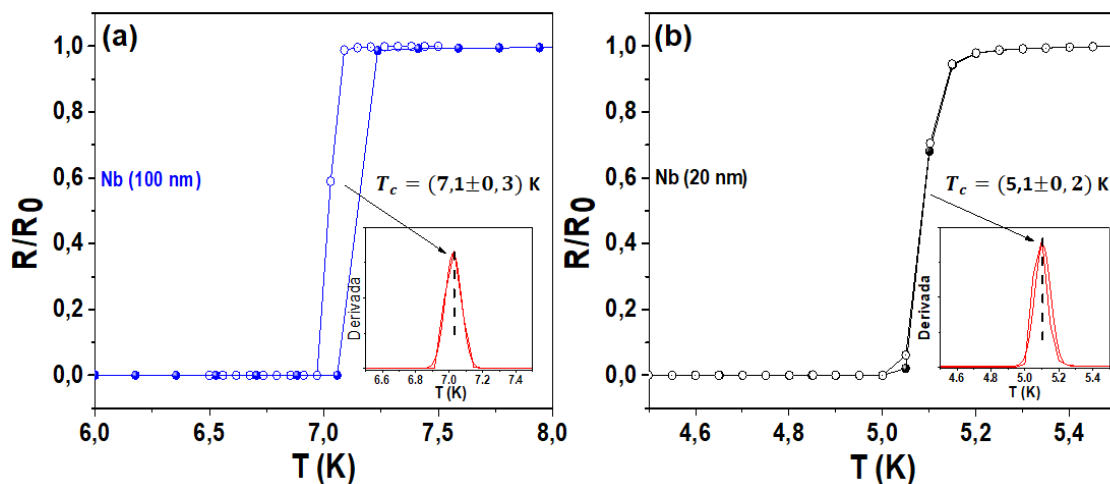


Figura 4.6: Curvas de R/R_0 para duas amostras de Nb100 (a) e duas amostras de Nb20 (b). No canto direito de ambas as curvas se encontra o ponto de máximo da curva (em vermelho), indicando o ponto de inflexão das curvas (T_c).

Demonstrado que as propriedades supercondutoras (pelo menos, T_c , que foi sistematicamente testado) são reproduzíveis nos filmes de Nb preparados em tempos distintos no sistema *Magnetron Sputtering Orion-8*, é possível garantir que estas propriedades sejam também estabelecidas nos sistemas híbridos Nb/FM a serem estudados nas próximas seções. Entretanto, antes de prosseguir, há necessidade de estudos adicionais das propriedades de magneto-transportes dos filmes Nb20 e Nb100 com campos magnéticos sendo aplicados paralelo ($B_{||}$) e perpendicularmente (B_{\perp}) ao plano do filme (estudo do efeito anisotrópico SC).

Na Figura 4.7 é mostrado um conjunto de curvas $R(T,B)/R_0$ registradas em intervalo de temperatura em torno dos valores de T_c dos filmes Nb20 e Nb100, para diferentes valores de campos magnéticos aplicados. Estes campos

são aplicados em duas geometrias distintas: $B_{||}$ (lado esquerdo de a e b) e B_{\perp} (lado direito de a e b). Desta figura, é nítida a grande mudança nos valores de T_C ocasionadas pela presença do campo aplicado, mas amplificada para a configuração de campo B_{\perp} em ambas as amostras (Nb20 e Nb100). Essas alterações dos valores de T_C são intensificadas nos filmes mais finos de Nb (Nb20), devido à sua baixa dimensionalidade [13]. Como já relatado, os valores de T_C dos filmes de Nb são inferiores ao valor do Nb fase *bulk* (9,2 K). No entanto, esses valores de T_C são consistentes com os efeitos de dimensionalidade [13] e são semelhantes outros valores reportados na literatura para filmes de Nb crescidos no grupo do LEMAG/UFES [36] e por outros grupos em condições semelhantes [12,112-113]. Sob nossas condições experimentais, o valor mais alto de T_C (~ 7 K) foi o obtido para os filmes Nb100 depositados com $T_S = 100$ °C [36]. Ainda em nosso grupo de pesquisa, um valor de T_C ótimo (9,2 K) só foi obtido para filmes de Nb500 depositado com $T_S = 500$ °C. Todavia, como será mostrada adiante, essa espessura Nb inviabiliza o estudo dos efeitos de proximidade e anisotrópico a serem estudados nesta tese de doutorado.

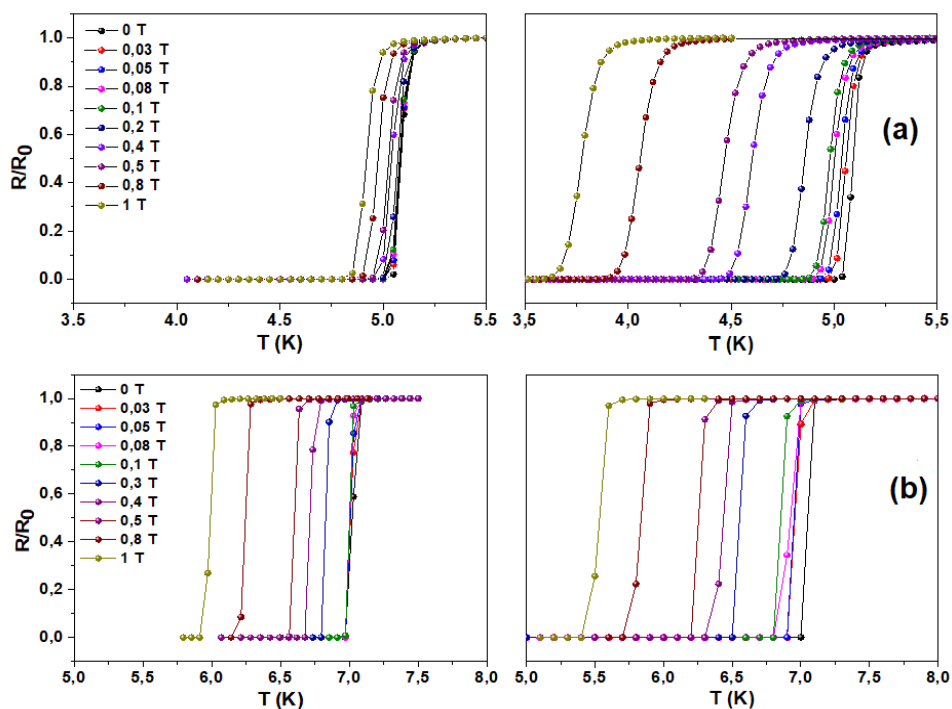


Figura 4.7: Curvas de R/R_0 para os filmes de Nb(20 nm) (a) e Nb(100nm) (b). Os experimentos foram realizados nas duas configurações de campo magnético: paralelo ao plano da amostra ($B_{||}$: lado esquerdo) ou perpendicular ao plano da amostra (B_{\perp} : lado direito).

A Figura 4.8 foi construída com os valores de T_C determinados com as diferentes curvas $R(T,B)/R_0$ das Fig. 4.7. Nesta figura são mostrados os comportamentos de $T_C(B)$ para os filmes de Nb20 (símbolos pretos) e Nb100 (símbolos azuis) para os casos em que os campos aplicados são paralelos ($B_{||}$: círculos completos) e perpendiculares (B_{\perp} : quadrados completos) ao plano do filme. As curvas $T_C(B)$ foram ajustadas com funções polinomiais de graus: 1 (linear) e 2 (quadrática), conforme indicadas na Fig. 4.8. Na configuração de B_{\perp} [Fig.4.8], um comportamento linear é encontrado para ambos os filmes de Nb (Nb20 e Nb100), conforme sugerido pela Eq. (4.4). Por outro lado, há uma dependência quadrática das curvas de $T_C(B)$ para medidas na configuração de campo $B_{||}$. Os valores de $T_C(0)$ são respectivamente 5,0(1) K e 6,99(1) K para as amostras de Nb20 e Nb100, confirmando a supressão de T_C quando a espessura do filme é reduzida [121]. O segundo campo crítico (B_{c2}) em $T = 0$ K para esses filmes de Nb também foi calculado usando a Eq. (4.4) para o caso da geometria campo B_{\perp} . Os valores encontrados são: $B_{c2\perp}(0) = 3,7$ T e $B_{c2\perp}(0) = 4,6$ T para os filmes de Nb20 e Nb100, respectivamente. Os valores de $B_{c2\perp}(0)$, derivados de nossos dados, também sugerem uma redução do valor de $B_{c2\perp}(0)$ com a dimensionalidade da camada de Nb e são semelhantes aos relatados na literatura para sistemas supercondutores [15,112].

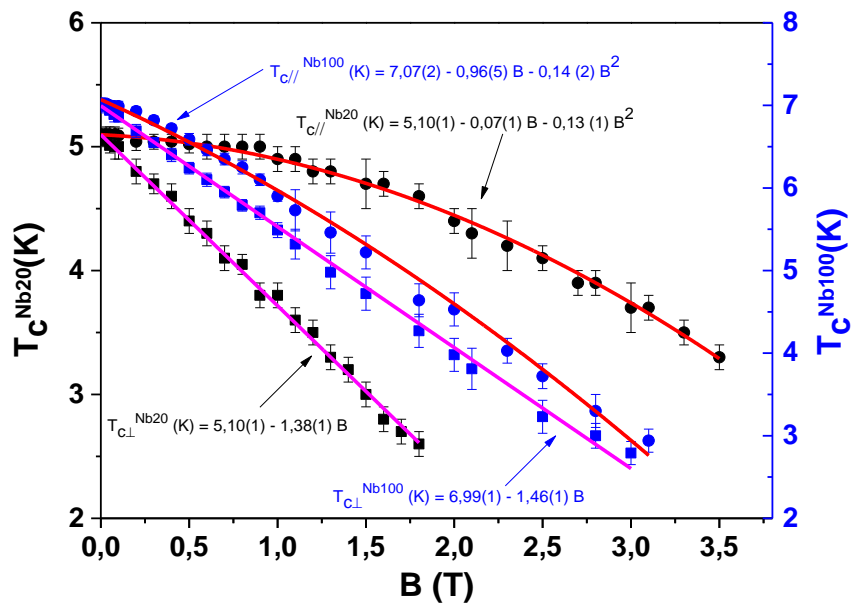


Figura 4.8: Comportamento de T_C em função do campo magnético aplicado (B) para filmes [Nb20 símbolos pretos] e [Nb100 símbolos azuis]. Os círculos completos correspondem aos dados na configuração $B_{C2||}$, enquanto os quadrados são devidos aos dados na configuração $B_{C2\perp}$. As linhas que passam pelos dados experimentais correspondem a ajustes usando funções polinomiais.

Para a geometria de campo aplicado paralelo ($B_{||}$), os dados de $T_C(B)$ foram ajustados com uma função quadrática. Valores similares de $T_C(0)$ de 7,07(2) K para o filme Nb100 e 5,11(1) K para o filme Nb20 foram novamente obtidos (considerando as incertezas). Um fato interessante é que as funções usadas nos ajustes dos dados experimentais [Fig. 4.8], em geral, seguem o comportamento sugerido pela Eq. (4.5), exceto pela adição de um termo linear com o campo na função. Tomando os comportamentos de T_C é nítido primeiro que para o filme de Nb100 apenas pequenas diferenças entre valores de T_C [obtidos na geometria de campo perpendicular ($T_{C\perp}$) e paralela ($T_{C||}$)] são vistas em todo o intervalo de campos aplicados (não há grande variação para um dado valor de campo). Por outro lado, uma grande diferença entre as duas curvas $T_C(B)$ da Fig. 4.8 ($T_{C\perp}$ e $T_{C||}$) é claramente vista para a amostra de Nb20 (para cada valor de B em altos campos). Essa diferença no comportamento de $T_{C\perp}$ e $T_{C||}$ para as amostras de Nb20 e Nb100 pode ser atribuída principalmente ao efeito de espessura (maior caráter anisotrópico no filme Nb20).

Na Fig. 4.9 é apresentado o comportamento da diferença de temperatura de transição supercondutora ΔT_c [definido pela Eq. (4.6)] dos filmes de Nb20 e Nb100. Desta figura, é nítido o aumento linear com o campo de ΔT_c no caso do filme Nb20 para campos baixos ($B < 1$ T), lembrando que neste caso o campo interno na camada SC é dado pelo campo aplicado menos a permeabilidade magnética vezes a magnetização em um dado valor de campo (o campo interno varia linearmente com a magnetização induzida pelo campo aplicado). No entanto, a amostra de Nb100 apresenta um comportamento com o campo aplicado bastante diferente, como se fosse um comportamento do tipo exponencial (a curva $\Delta T_c(B)$ sugere uma dependência para um regime de saturação em $B > 1$ T). Dessa forma, os dados de $\Delta T_c(B)$ para filmes de Nb100 foram ajustados com uma função exponencial, conforme sugerido pela Eq. (4.7). Lembrando que este comportamento significa que o fator $\gamma = \frac{B_{c2\parallel}(0)}{B_{c2\perp}(0)}$ da Eq. (4.7) é pequeno (redução do efeito anisotrópico causado pela dimensionalidade do filme de Nb).

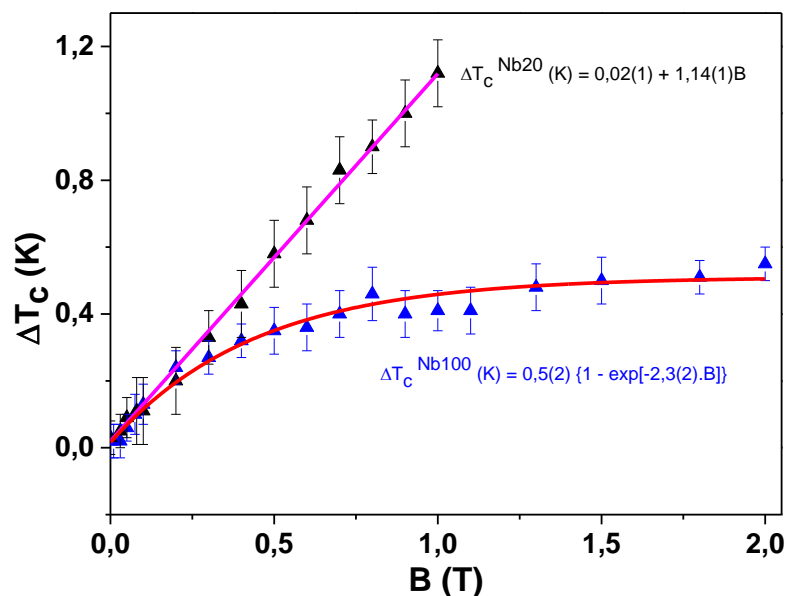


Figura 4.9: Comportamento da variação de temperatura crítica (ΔT_c) em função de B para os filmes Nb20 (triângulos pretos) e Nb100 (triângulos azuis). Esses dados foram obtidos da Fig. 4.5, usando a definição $\Delta T_c = T_{c\parallel} - T_{c\perp}$. As linhas sólidas são funções matemáticas ajustados no comportamento dos dados.

Em outras palavras, essa diferença no comportamento de $\Delta T_c(B)$ entre os filmes de Nb puros (Nb20 e Nb100) pode ser entendida como uma sequência direta do efeito de espessura dos filmes e como se comporta o campo magnético interno na camada supercondutora de Nb. Para o filme de Nb20, o comportamento de $\Delta T_c(B)$ mostra a tendência linear esperada e discutida anteriormente na Eq. (4.8), onde se espera que o efeito anisotrópico seja dominante, mas com $1/\gamma \ll 1$. Então, os resultados experimentais de $\Delta T_c(B)$, obtidos nesse trabalho, indicam experimentalmente que a redução da espessura do Nb leva a um aumento do coeficiente de anisotropia (γ), tornando insignificante o segundo termo na dependência da Eq. (4.7), como discutido no início deste capítulo. Assim, para a amostra de Nb20 um comportamento linear é observado para $\Delta T_c(B)$, pelo menos, para os valores de campo magnético explorado neste trabalho de tese. Não foi possível a investigação de $\Delta T_c(B)$ para maiores ($B > 1$ T) para o filme Nb20, pois a supressão máxima de $T_{c\perp}$ ocorre em temperaturas inferiores ao limite de temperatura que alcança nosso sistema de medida (2 K), impossibilitando a investigação de $\Delta T_c(B)$.

Todavia, para o filme Nb100 foi possível fazer estudo para campos magnéticos mais altos, ou seja, quando a espessura do Nb aumentada cinco vezes mais (100 nm), o coeficiente anisotrópico (γ) diminui significativamente, aumentando o peso numérico do segundo termo na Eq. (4.7). O melhor ajuste dos dados $\Delta T_c(B)$ para o filme Nb100 foi obtido com uma função exponencial, que captura, de alguma forma, o regime de saturação observado em altos campos. O primeiro termo da equação tipo exponencial, usada ajustar a curva $\Delta T_c(B)$ do filme Nb100, é simplesmente um deslocamento da variação $\Delta T_c(B)$. Nas próximas seções, esse modelo físico (aqui proposto) será utilizado para investigar o campo magnético disperso (*stray field*) da camada FM em sistemas de heteroestruturas híbridas (SC/FM) e até mesmo em sistemas híbridos tipo válvula de *spin* supercondutora (VSS).

4.3 Resultados Experimentais dos Filmes Finos Híbridos Controles SC/FM e Filmes Finos do tipo Válvulas de *Spin* Supercondutoras (VSS)

Nesta seção, resultados das caracterizações estruturais, medidas magnetização e magneto-transportes em sistemas híbridos SC/FM e VSS serão apresentados e discutidos. Os filmes híbridos são: (i) Nb(20-100)/Cu5/Co40 (ou Nb(20-100)/Cu/Co), (ii) Nb(20-100)/Cu5/Py2 (ou Nb(20-100)/Cu/Py) e (iii) Nb(20-100)/Cu5/Py2/Cu5/Co40 (ou VSS20 e VSS100), conforme apresentado no Capítulo 3. Portanto, será testada aqui a nova abordagem definida (descrita na seção 4.1 deste capítulo) através do modelo anisotrópico de GL, para extrair informações sobre a influência da camada FM nas propriedades SC dos filmes de Nb.

4.3.1 Caracterização Estrutural das Heteroestruturas Híbridas SC/FM

Como muitas das propriedades são semelhantes nos sistemas Nb(20-100)/Cu/Co, Nb(20-100)/Cu/Py e VSS20 e VSS100, aqui serão apresentados alguns resultados estruturais dos filmes híbridos Nb(20)/Cu/Py e Nb(20)/Cu/Co, conforme mostrado respectivamente na Figura 4.10 (a) e (b) [outros resultados estão dispostos nos Apêndices C e D]. Em outras palavras, serão apresentadas as características estruturais dessas duas amostras com intuito de entender a influência dos efeitos de tensão nas camadas que compõem os sistemas híbridos estudados. Ademais, (i) resultados estruturais de outras heteroestruturas (aqui estudadas) estão disponíveis no Apêndice C e (ii) no sistema híbrido VSS20 e VSS100, os picos de Bragg referentes as fases FCC das camadas de Py, Co e Cu estão praticamente sobrepostos, devido à similaridade entre seus parâmetros de redes, conforme será mostrado abaixo com os resultados dispostos na Tabela 4.2.

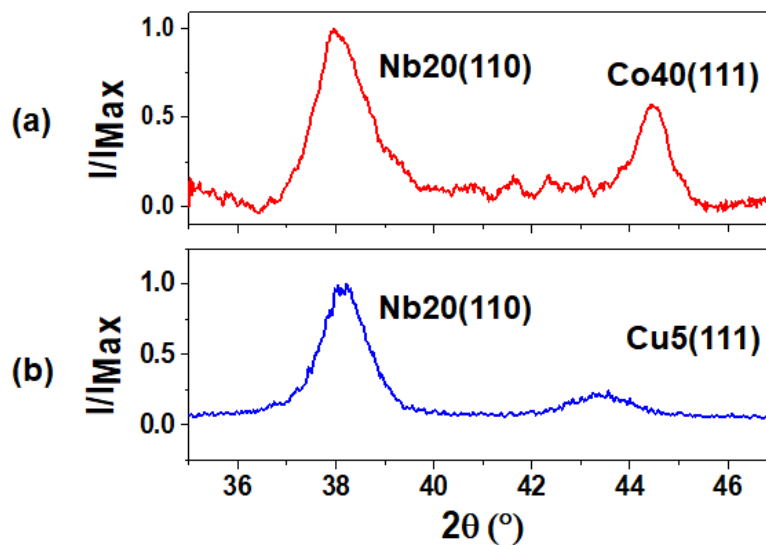


Figura 4.10: Padrões DRX convencionais (Bragg-Brentano) normalizados para os filmes híbridos (a) Si(100)/Nb20/Cu5/Co40 e (b) Si(100)/Nb20/Cu5/Py2.

Os padrões DRX [Fig. 4.10(a) e (b)] indicam picos de Bragg bem definidos tanto para o Nb20 [pico (110) da estrutura BCC] quanto para as outras camadas de [Fig. 4.10(a)] Py e [Fig. 4.10(b)] Co; ambas com o plano (111) da estrutura FCC. Ajustando individualmente os picos de Bragg, com linhas do tipo lorentziana, suas posições angulares e larguras a meia altura foram determinadas, e conseqüentemente os valores de tamanhos de grãos cristalinos de cada fase (τ) usando a fórmula de Scherrer [97] e os parâmetros de redes (a) das fases através da Lei de Bragg foram calculados. Os resultados estão dispostos na Tabela 4.2.

Tabela 4.2: Valores dos parâmetros de rede (a) e do tamanho de grão (τ) obtidos de ajustes dos padrões DRX das heteroestruturas híbridas de Si(100)/Nb20/Cu5/Py2 e Si(100)/Nb20/Cu5/Co40.

Amostra	a (nm) (Nb)	τ (nm) (Nb)	a (nm) (Cu/FM)	τ (nm) (Cu/FM)
Nb20/Cu/Py	$0,336 \pm 0,002$	$6,9 \pm 0,3$	$0,364 \pm 0,0002$	$1,6 \pm 0,3$
Nb20/Cu/Co	$0,334 \pm 0,003$	$7,1 \pm 0,2$	$0,353 \pm 0,0003$	$4,7 \pm 0,2$

Como discutido para os filmes Nb20, os picos de Bragg da camada de Nb nos filmes híbridos de Nb20/Cu5/Py e Nb20/Cu5/Co40 também estão em posições angulares similares e com larguras a meia altura análogas aos dos

filmes Nb₂₀ (puros), sugerindo valores similares de parâmetro de rede e de tamanho de grãos para as camadas de Nb. Estas condições sugerem que seus valores de T_c , em princípio, devem ser similares ao encontrado para o filme puro de Nb (Nb₂₀). Assim, possíveis mudanças nos valores de T_c das camadas de Nb dos filmes híbridos deve ser realmente atribuída à camada FM ou Py ou Co ou de ambas no caso das estruturas híbridas SSV.

Com relação às camadas FM de Py ou Co, é possível inferir que seus valores de parâmetros de redes da fase FCC do Co é ligeiramente próximo ao respectivo valor de *bulk*, indicando que o crescimento das camadas FM (Py ou Co) sobre uma camada semente de Cu não alterou significativamente os valores do parâmetro de rede, conseqüentemente estas camadas também estão sujeitas há uma possível tensão interna, que pode levar a diferentes estruturas de domínios magnéticos.

4.3.2 Caracterização Magnética dos Filmes Finos Controles FM de Py e Co e das Heteroestruturas Híbridas SC/FM e VSS

Como a questão do campo magnético disperso das camadas FM (*stray field*) é um ponto fundamental desse trabalho de tese, é importante que seja apresentada um bom estudo das propriedades magnéticas dos filmes de Py e Co crescidos sobre uma camada de Cu de 5 nm, que é a camada espaçadora usada neste trabalho tanto entre as interfaces dos sistemas híbridos simples SC/FM como nas interfaces FM1/FM2 dos sistema VSS. Além das curvas $M(B)$ dos filmes controles FM (Py e Co), serão também apresentadas curvas $M(B)$ das heteroestruturas híbridas SC/FM. Em todos os casos, os laços $M(B)$ foram medidos tomando o seguinte protocolo: o campo magnético da bobina supercondutora do equipamento PPMS foi inicialmente zerado no modo oscilante. Então, a amostra foi resfriada até a temperatura desejada (ou medidas em 300 K). Em seguida, o laço $M(B)$ foi medido partindo do campo zero até de + 3 T, posteriormente levando ao campo de - 3 T e finalmente ao campo de + 3 T (perfazendo um ciclo fechado de campo), no caso de medidas para campo de varredura de ± 3 T.

Na Figura 4.11 (a) e (b) são mostrados os laços $M(B)$ registrados em 300 K nas configurações de campo magnético paralelo ($B_{//}$ - linhas vermelhas) e perpendicular (B_{\perp} - linhas pretas) ao plano do filme para filmes controles FM Cu5/Co40 e Cu5/Py2. Esses filmes são assumidos serem amostras controles FM, pois só possuem as contribuições FM ou da camada de Py ou da de Co (Cu tem caráter diamagnético, mas com sinal $\cong - 10^{-6}$, assim como a contribuição diamagnética proveniente do substrato de Si, que foi previamente removida – há um conhecimento prévio do comportamento de $M(B)$ do Si). Ainda na Fig. 4.11 (c) e (d) são também plotados os laços $M(B)$ [configuração de campo B_{\perp}] para duas temperaturas distintas 3 K (linha azul) e 10 K (linha marrom) para filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 e Nb20/Cu5/Py2.

A discussão começa com os resultados dos filmes controles FM, uma vez que suas propriedades magnéticas serão importantes para a discussão do efeito de campo magnético disperso e/ou efeito de proximidade supercondutor nos sistemas híbridos produzidos nessa tese. Por um lado, os dados da Fig. 4.11 (a) sugerem que um campo aplicado de 0,15 T produz saturação da magnetização da camada de Co na configuração de campo $B_{//}$. Por outro lado, os dados da Fig. 4.11 (b) indicam que a camada de Py precisa de um campo magnético superior ($\sim 0,3$ T) para a saturação da magnetização na mesma configuração.

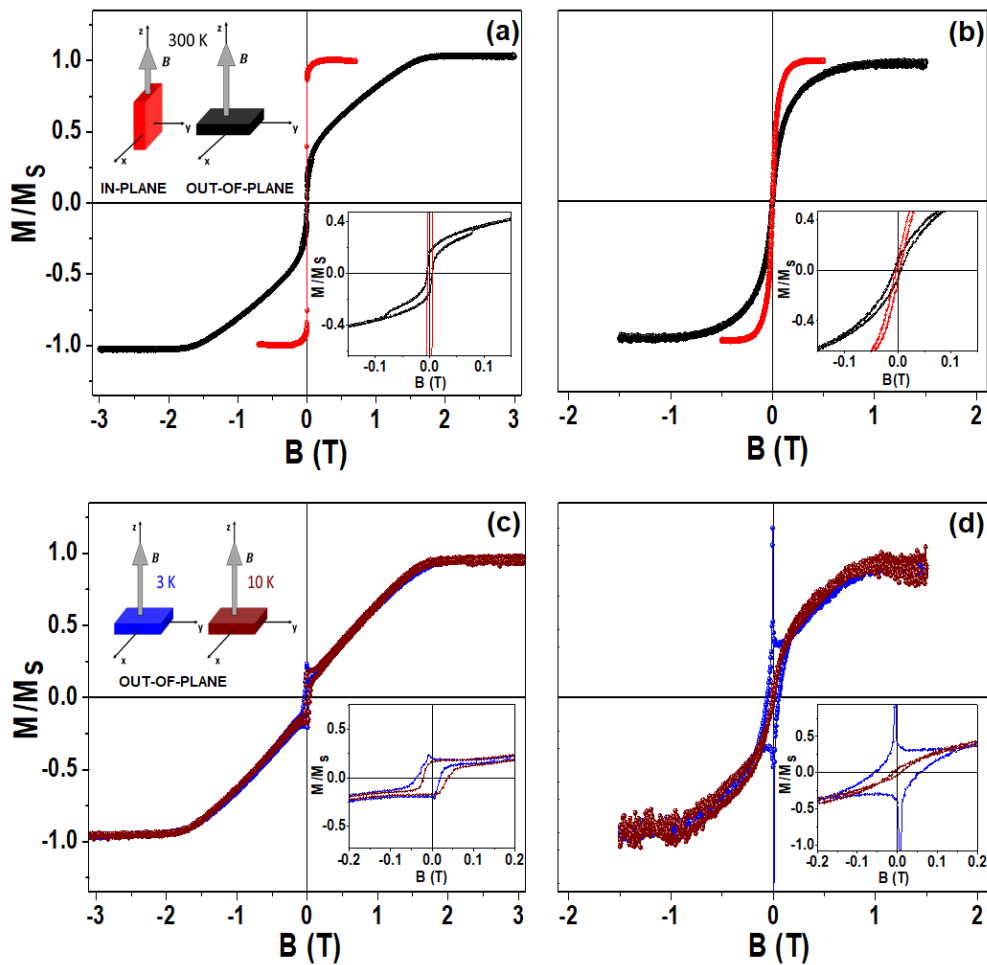


Figura 4.11: Curvas $M(B)$ tomadas em 300 K nas configurações de campo paralelo ($B_{//}$ -linhas vermelhas) e perpendicular (B_{\perp} -linhas pretas) ao plano do filme para os sistemas controle FM (a) Cu5/Co40 e (b) Cu5/Py2. Em (c) Nb20/Cu5/Co40 e (d) Nb20/Cu5/Py2 são também mostrados os laços $M(B)$ obtidos na configuração de campo perpendicular (B_{\perp}) e registrados em 3 K (linhas azuis) e 10 K (linhas marrons). As configurações dos campos utilizados estão representadas no canto esquerdo superior dos gráficos (a) e (c).

Já para a configuração de campo B_{\perp} , a magnetização de saturação do Py ocorre em aproximadamente 0,5 T [Fig. 4.11 (b)], enquanto que a magnetização do Co só atinge a saturação acima de 2 T [Fig. 4.11 (a)]. Os comportamentos acima discutidos para as camadas de Py e Co [Fig. 4.11 (a) e (b)], para configuração de campo B_{\perp} , são justificados pelo fato de que a energia magnética da camada de Co é governada pela contribuição da energia magnética anisotrópica de forma, sugerindo que uma grande parte dos spins da camada de Co se encontra paralelo ao plano do filme. Entretanto, como será discutido mais adiante, há uma fração de spins de Co perpendicular ao plano do filme (vide alta remanência para configuração de campo B_{\perp}).

Em baixas temperaturas (ex.: 10 K), as contribuições das camadas FM para as curvas $M(B)$ são semelhantes às encontradas nos laços medidos em 300 K na mesma configuração de campo [vide Fig. 4.11 (c) e (d) para o sistema híbrido], exceto pelo fato de que os valores do campo coercivo (H_c) se tornam mais altos, como esperado para ferromagnetos macios. Todavia, os laços $M(B)$ tomados em 3 K possuem duas contribuições distintas (diamagnética e ferromagnética) superpostas, ou seja, as contribuições do estado SC do Nb (diamagneto perfeito) e do estado FM do Py ou Co. Como visto acima, o maior valor de T_C medido em filmes de Nb ($d_{Nb} = 100$ nm) neste trabalho foi de 7 K. Conseqüentemente, em 10 K somente a camada FM (Co ou Py) contribui para o laço $M(B)$ dos filmes híbridos (essa temperatura foi assumida com a temperatura que a amostra tinha que ser levada antes de ser resfriada em processo de ZFC).

Voltando às propriedades magnéticas dos filmes controles FM [Fig. 4.11 (a) e (b)], outro ponto importante é que a curva $M(B)$, obtida na configuração de campo B_{\perp} , tem um aumento abrupto da magnetização do Co, em campos magnéticos baixos ($\sim 0,1$ T), antes de crescer linearmente com o aumento na intensidade do campo B. Em outras palavras, após o salto no valor da magnetização (próximo a origem de campo B), a mesma cresce quase linearmente com aumento da intensidade do campo B até atingir a saturação para valores da ordem ou maiores do que 2 T. Assim, esse aumento abrupto da magnetização do Co (observado na configuração de campo B_{\perp}) sugere que uma fração de spins da camada de Co tem seu eixo de fácil magnetização perpendicular ao plano do filme e, portanto, será assumido que há uma fração de spins de Co perpendicular ao plano do filme (spins- \perp). A outra fração de spins de Co paralela ao plano do filme (spins- \parallel) é suportada (i) pelo crescimento linear da magnetização com o campo B_{\perp} e (ii) pela energia de anisotropia de forma que impõe spins no plano como mínima energia magnética do sistema (a fração spins- \parallel é proveniente do fato de que a camada de Co é relativamente espessa (40 nm) e, portanto, tendo uma grande contribuição da anisotropia de forma que favorece spins no plano dos filmes como forma de minimizar a energia magnetostática). Essas duas configurações de spins (spins- \perp e spins- \parallel) na camada de Co provocam uma distribuição não homogênea de domínios magnéticos nos filmes de Co crescidos ou sobre Cu e ou sobre Nb/Cu. Por sua

vez, esta distribuição não homogênea de spins da camada de Co será a responsável pela presença de campo magnético disperso da camada FM [campo magnético fora (na vizinhança) da região do filme] e que, portanto, poderá atuar sobre a camada SC de Nb. Ademais, essas estruturas de domínios magnéticos podem ser modificadas com aplicação de campos externos, conforme reportado na literatura [114], principalmente com medidas na configuração B_{\perp} .

Ao contrário, as propriedades magnéticas da camada de Py são ligeiramente distintas daquelas medidas para a camada de Co. Primeiro, os spins da camada de Py saturam mais rapidamente se comparados com os da camada de Co para a configuração B_{\perp} . Além disso, os spins da camada de Py não estão inteiramente no plano do filme, conforme indicam os dados do laço $M(B)$ tomados na configuração de campo $B_{//}$ [Fig. 4.11(b)], ou seja, não há uma rápida saturação da magnetização da camada de Py para medidas com campo $B_{//}$. A explicação para tal efeito presente na camada de Py vem do seu crescimento na geometria de incidência rasante do feixe de vapor e com o substrato parado, onde grãos cristalinos colunares e inclinados (com relação ao plano do substrato) são gerados e impõe magnetização ligeiramente fora do plano do substrato [88,114,115]. Como sua espessura é pequena, relativa aquela da camada de Co, sua energia de anisotropia de forma não imporá spins no plano e seguirão a tendência do formato dos grãos cristalinos de Py. Os domínios magnéticos então são do tipo “cilindros” largos e com direção para fora do plano do filme, não perpendicular, mas seguinte a geometria dos grãos cristalinos (tipo tubos inclinados), conforme reportado na literatura científica [28].

Dito isso, é possível inferir que para a configuração de campo B_{\perp} , o vetor campo magnético efetivo B_{ef} será a soma vetorial do campo magnéticos aplicado (B) mais o campo magnético disperso (B_{FM}) proveniente da camada FM (contribuição da camada de Co e/ou de Py). Esse campo B_{ef} deve influenciar significativamente as propriedades supercondutoras da camada de Nb, quando a contribuição dos domínios magnéticos fora do plano for gradualmente modificada pela mudança na intensidade do campo B [114].

Considerando que neste trabalho a espessura da camada de Nb (d_{Nb}) foi alterada (dois valores foram usados: 20 e 100 nm), o entendimento das propriedades magnéticas das camadas FM crescidas sobre uma camada de Nb mais espessa e ao mesmo tempo nas heteroestruturas do tipo VSS será

apresentado abaixo antes de se iniciar a discussão das propriedades de magneto-transporte dos filmes híbridos Nb/FM. Os laços $M(B)$ serão plotados na Figura 4.12 (a) e (b) para configuração de campo B_{\perp} para os filmes híbridos Nb100/Cu5/Co40 e Nb20/Cu5/Co40. Os laços $M(B)$ tomados na configuração de campo B_{\parallel} são semelhantes aos apresentados na Fig. 4.11 (a), ou seja, indicam que a saturação da magnetização de Co é atingida para campos de 0,1 T (a maioria dos spins do Co estão no plano do filme).

Da mesma forma, os laços $M(B)$ obtidos de dois filmes híbridos a base de Co [Nb(d_{Nb})/Cu5/Co40] sugerem que a magnetização da camada de Co apresenta características semelhantes as aquelas discutidas acima, onde há primeiro um aumento rápido da magnetização nas regiões de campo (B) baixo ($< 0, 2$ T), para posteriormente haver um crescimento linear até atingir a saturação para campos maiores do que 2 T. O que é possível constatar é que à medida que o valor de d_{Nb} cresce, o valor da remanência diminui, indicando que uma fração menor de spins de Co com configuração perpendicular ao plano do filme (menor fração de spins- \perp). Desta forma, assumindo uma proporcionalidade direta entre a magnetização e a espessura da camada de Co (área semelhante para as frações magnéticas e as mesmas sendo formadas por camadas adjacentes contínuas) e o fato de haver uma grande remanência para os filmes contendo Co, as frações de magnetização do Co fora do plano (spins- \perp) nas amostras de Nb20/Cu/Co40 e Nb100/Cu/Co40 foram então estimadas. No caso do filme híbrido Nb100/Cu/Co40, seu valor de remanência sugere uma espessura de 5 nm de Co com spin- \perp , enquanto 10 nm da camada de Co têm spin- \perp para o filme híbrido Nb20/Cu5/Co40.

A explicação física para essa diferença nas frações de spin- \perp da camada de Co entre as duas amostras (Nb20/Cu/Co40 e Nb100/Cu/Co40) deve ser a redução da tensão interna na camada de Nb à medida que d_{Nb} aumenta, consequentemente propagando menor tensão para as camadas adjacentes de Cu e Co em sequência. A redução na tensão interna na camada de Nb foi experimentalmente verificada com a tendência de aproximação do valor do parâmetro de rede ao valor esperado para o Nb *bulk* quando a espessura de Nb do filme aumentou (Tabela 4.1). Finalmente, como dito acima e, enfatizado aqui, essas duas frações spins (spins- \parallel e spins- \perp) conduz a um campo magnético não

homogêneo próximo a superfície da camada FM (Co) que, por sua vez, atuará sobre os pares de Cooper quando eles tunelarem para a camada FM, através da camada de Cu [21,35,115].

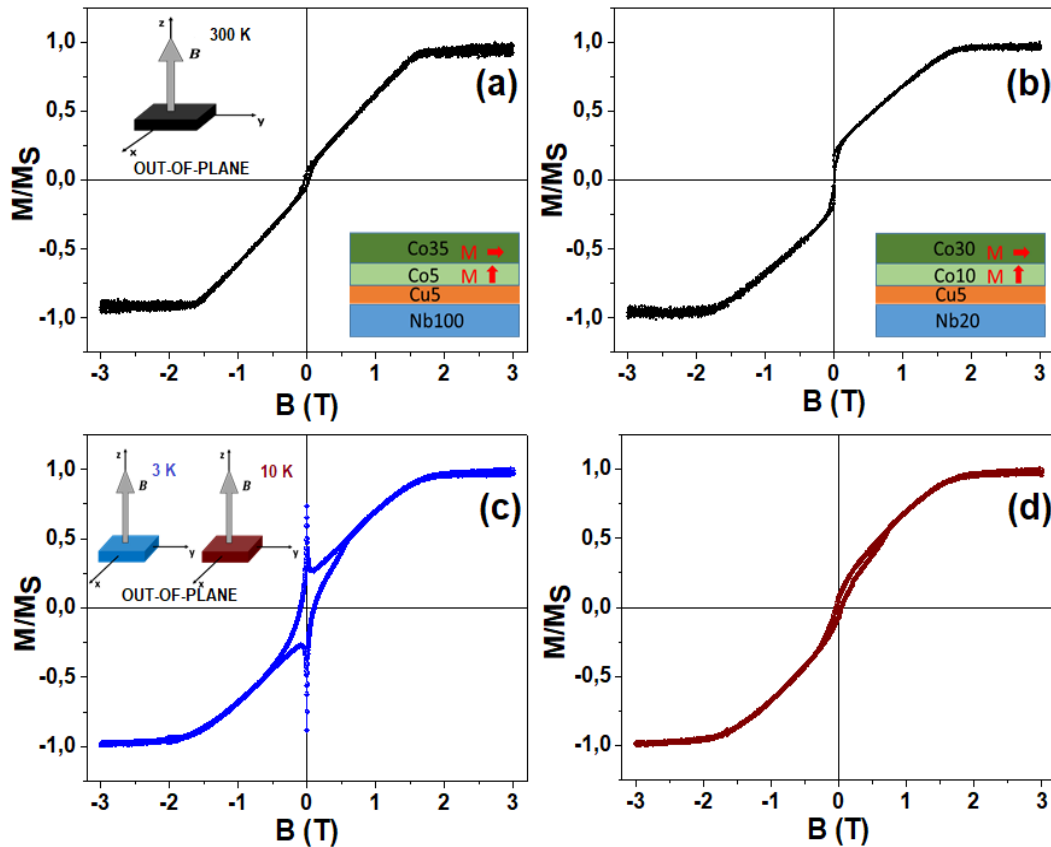


Figura 4.12: Curvas $M(B)$ tomadas em 300 K nas configurações de campo paralelo ($B_{//}$ -linhas vermelhas) e perpendicular (B_{\perp} -linhas pretas) ao plano do filme para os sistemas controle FM (a) Nb100/Cu5/Co40 e (b) N20/Cu5/Co40. Em (c) e (d) são também mostrados os laços $M(B)$ obtidos na configuração de campo perpendicular (B_{\perp}) e registrados em 3 K (linhas azuis) e 10 K (linhas marrons) para a VVS20. As configurações dos campos utilizados estão representadas no canto esquerdo superior dos gráficos (a) e (c).

Na Figura 4.12 (c) e (d) são apresentados os laços de $M(B)$ para a VVS20 [Nb20/Cu5/Py2/Cu5/Co40] tomados configuração de campo B_{\perp} para as temperaturas de 10 K (linha marrom) e 3 K (linha azul). Novamente, no laço $M(B)$ tomado em 3 K, são nítidas as contribuições do estado SC (diamagnético perfeito) do Nb e do estado FM do Py e Co. Em 10 K, o laço $M(B)$ é praticamente devido a soma vetorial das magnetizações (anisotropias) das camadas de Py e de Co, que, como demonstrado acima, têm distintos campos de anisotropias

magnéticas. Desta forma, o laço $M(B)$ da VSS20 é mais complexo e não há possibilidade de separação das distintas contribuições FM, menos estando o Nb no estado paramagnético em 10 K.

4.3.3 Determinação da Influência Sobre o Valor de T_C do Nb do Espaçador Metálico de Cu nas Heteroestruturas Híbridas SC/FM (VSS)

No intuito de se investigar a influência do espaçador não-magnético (NM) de Cu em heteroestruturas híbridas SC/FM, foi escolhido o sistema híbrido VSS20 com espessuras distintas da camada de Cu, ou seja, o sistema Nb20/Cu(d_{Cu})/Py2/Cu(d_{Cu})/Co40.

Desta maneira, foram produzidas heteroestruturas híbridas (VSS20) com $d_{Cu} = 5$ (previamente discutida); 2,5 e 0 nm. Na Figura 4.13 (a) são apresentadas as curvas de $R(T)/R_0$, tomadas em campo de prova nulo ($B = 0T$), para as SSV Nb20/Cu5/Py2/Cu5/Co40 (símbolos pretos), Nb20/Cu2,5/Py2/Cu2,5/Co40 (símbolos vermelhos) e Nb20/Cu0/Py2/Cu0/Co40 (símbolos azuis). Na Figura 4.13 (b) são apresentados os dados de T_C vs. d_{Cu} . De acordo com a Fig. 4.13 (a) e (b) é nítido observar que à medida que o valor de d_{Cu} diminui, há uma redução linear e significativa nos valores de T_C dos filmes com $d_{Nb} = 20$ nm [Fig. 4.13(b)]. Essa redução nos valores de T_C é basicamente provocada pelos efeitos de campos dispersos e de proximidade da camada FM sobre a camada SC de Nb. Assim, retirar a camada espaçadora de Cu provoca uma redução significativa no valor de T_C de até $(1,4 \pm 0,3)$ K. Esse baixo valor de T_C , para amostra sem espaçador de Cu, inviabiliza tomadas de curvas de $R(T, B)$ na configuração de campo B_{\perp} , pois, como já dito, nosso equipamento de medida tem uma limitação em temperatura (menor valor é de 2 K).

Como descrito no Cap. 3, foi escolhido trabalhar nesta tese de doutorado o valor $d_{Cu} = 5$ nm como espaçadores nos sistemas híbridos em geral pois: (i) nos possibilita valores relativamente altos de T_C para as camadas SC de Nb (possível de estudar as propriedades com campo externo), (ii) evita a possível camada morta magnética que pode se formar na interface Nb/FM, afetando diretamente as propriedades supercondutoras do material (T_C) como relatado por outros trabalhos [21,35] e, (iii) esse espaçador [$d_{Cu}(5$ nm)] entre as camadas FM de Py e Co, nos sistemas VSSs, respectivamente, favorece o

desacoplamento magnético entre estas camadas FM, que tem baixas interações magnéticas [21,35].

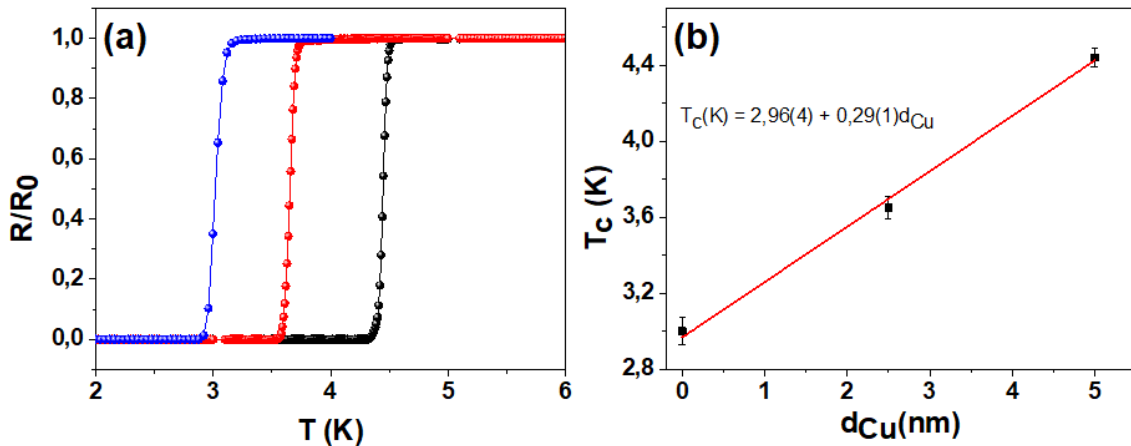


Figura 4.13: (a) Curvas de resistências elétricas normalizadas, R/R_0 , em função da temperatura para as VSS com diferentes espessuras de Cu (d_{Cu}): Nb20/Cu5/Py2/Cu5/Co40 (símbolos pretos), Nb20/Cu2,5/Py2/Cu2,5/Co40 (símbolos vermelhos) e Nb20/Cu0/Py2/Cu0/Co40 (símbolos azuis). Em (b), o comportamento de T_c vs d_{Cu} desses filmes SSV (em vermelho o ajuste linear dos dados).

4.4 Determinação do Campo Magnético Disperso (*Stray Field*) das Camadas FM (Co e Py) nos Filmes Finos Híbridos Controles (Nb/Cu/FM) e VSS

Nesta seção, o modelo desenvolvido na Seção 4.1 será testado nos dados experimentais, objetivando determinar o valor de campo magnético disperso (B_{FM}) de uma camada FM sobre a camada SC de Nb nas heteroestruturas do tipo Controles (Nb/Cu/FM com FM = Co ou Py) e nas VSS. Mais uma vez, segundo problemas clássicos da teoria eletromagnética e magnetismo, filmes finos infinitos uniformemente magnetizados (independentemente se a magnetização da camada estiver no plano ou fora dele), o valor do campo magnético disperso (fora do filme) é sempre nulo na ausência de campos magnéticos aplicados [116]. Entretanto, como já demonstrado acima, as magnetizações das camadas FM (Co ou Py) em nossos sistemas híbridos Nb/Cu/FM não são homogêneas, conseqüentemente é esperado um campo magnético disperso não nulo fora da camada FM. Antes de tratar do caso híbrido com configuração das camadas mais complexa (VSS), serão tratados

individualmente os casos dos sistemas controles híbridos Nb/Cu/FM com FM = Co ou Py, nas próximas seção.

4.4.1 Determinação do Campo Magnético Disperso (*Stray Field*) da Camada de Co (B_{Co}) em Filmes Híbridos Nb/Cu/Co

Na Figura 4.14 são mostradas as curvas $R(T, B)/R_0$ onde $R_0 = R(T=10\text{ K}, B=0\text{ T})$. Essas curvas foram obtidas em um intervalo de temperatura próximo aos valores de T_c e para campos magnéticos aplicados nas configurações: paralela ($B_{//}$ - curvas do lado esquerdo) e perpendicular (B_{\perp} - curvas do lado direito) ao plano para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 (a) e Nb100/Cu5/Co40 (b).

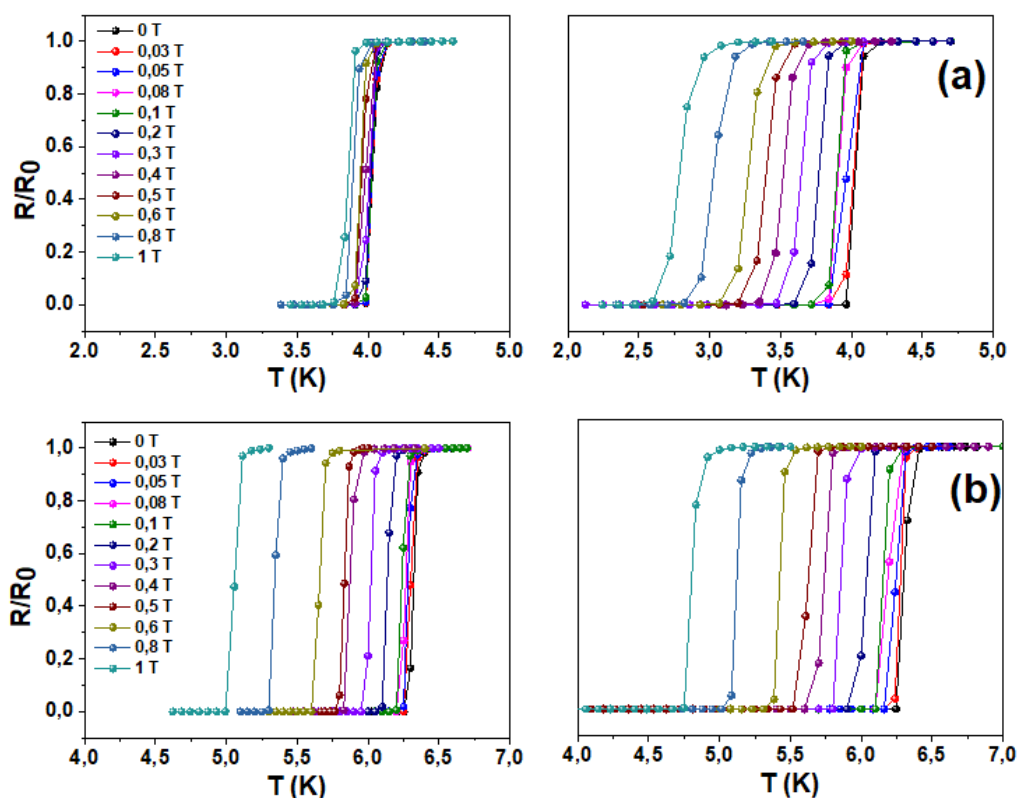


Figura: 4.14: Curvas de $R(T, B)/R(B=0, T=10\text{ K})$ (ou simplesmente R/R_0) para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 (a) e Nb100/Cu5/Co40 (b). Os experimentos foram realizados nas duas configurações de campo aplicado: paralelo ($B_{//}$: lado esquerdo) ou/e perpendicular (B_{\perp} : lado direito) ao plano da amostra.

Diante disso, como pode ser observado na Fig. 4.14 (a) e (b), há uma diferença nos valores de T_c para campos aplicados perpendicular ao plano da

amostra (B_{\perp}) quando comparados com os campos aplicados paralelo (B_{\parallel}). Novamente como observado nos filmes controles de Nb, a supressão (redução) nos valores de T_C é mais nítida no filme híbrido com a camada de Nb mais fina ($d_{Nb} = 20$ nm). Esse comportamento está intimamente relacionado a dimensionalidade da camada SC de Nb [13] e seus efeitos de tensões internas, supondo, em primeira aproximação, que a redução provocada pela camada FM é praticamente igual em ambos os casos. Além disso, vale frisar que os valores de T_C dos filmes híbrido Nb20/Cu5/Co40 e Nb100/Cu5/Co40 são inferiores aos dos filmes controles SC (filmes Nb20 e Nb100) apresentados anteriormente. Isso indica claramente a influência do magnetismo da camada FM de Co sobre a camada SC de Nb, já que os filmes de Nb têm sido replicados (ao longo de alguns anos no LEMAG) com valores similares de T_C [36]. A camada espaçadora de Cu não é responsável diretamente pela redução de T_C , mas ajuda a diminuir os efeitos de proximidade e do campo magnético disperso da camada FM [vide Fig. 4.13(b)]. Sob nossas condições experimentais, valores de T_C mensuráveis (nos sistemas híbridos em campo zero) foram obtidos para $d_{Nb} \leq 100$ nm; uma espessura que não nos limitaria para as análises físicas propostas neste trabalho (efeito anisotrópico em sistemas SC/FM de baixa dimensionalidade).

A Figura 4.15 é construída com os dados de T_C tomados a partir da Figura 4.14 (a) e (b). Então, nesta figura se tem os comportamentos de $T_C(B)$ para os filmes híbridos Nb(20 e 100)/Cu5/Co40, para as configurações de campos B_{\parallel} (círculos completos) e B_{\perp} (quadrados completos) ao plano do filme. Os dados experimentais $T_C(B)$ foram ajustados com funções polinomiais previstas pela teoria G-L para supercondutores anisotrópicos (linhas magentas para os ajustes com funções quadráticas e linhas vermelhas para ajustes com funções lineares). Qualitativamente, pequenas diferenças são novamente observadas, agora em sistemas híbridos, entre $T_{C\perp}(B)$ (quadrados) e $T_{C\parallel}(B)$ (círculos) para o filme de Nb100/Cu5/Co40, mas alterações significativas são encontradas em dados da amostra mais fina (Nb20/Cu5/Co40), quando o campo aplicado é superior a 0,25 T (este efeito também foi observado nos filmes controles SC Nb20 e Nb100 discutidos acima).

Mais especificamente, os dados de $T_{C\perp}(B)$ sugerem comportamentos do tipo lineares para ambos os filmes híbridos, como previsto pela teoria anisotrópica G-L (Eq. 4.5). Os seguintes parâmetros foram obtidos

respectivamente para os filmes de Nb20/Cu5/Co40 e Nb100/Cu5/Co40: $T_{C\perp} = 4,12(2)$ e $6,33(2)$ K e $B_{c2\perp}(0) = 3,1(1)$ e $4,1(1)$ T. Primeiro, esses parâmetros serão fundamentais para o cálculo do campo magnético disperso que será calculado adiante. Em segundo lugar, com esses parâmetros físicos, obtidos para os sistemas SC puro e híbridos SC/FM, é possível, por exemplo, mensurar as alterações relativas (em relação aos filmes controles SC) dos valores de T_C e $B_{c2\perp}(0)$. Para os filmes com $d_{Nb}=20$ nm, há uma redução relativa de aproximadamente 10% e 15% para os valores de T_C e $B_{c2\perp}(0)$, respectivamente. Em outras palavras, essas redução nos valores de T_C e $B_{c2\perp}(0)$ para os filmes híbridos (com respeito aos valores nos filmes controles SC de Nb) indicam diretamente a influência da camada FM de Co sobre essas propriedades [T_C e $B_{c2\perp}(0)$], já que a camada espaçadora de Cu (que reduz os efeitos do campo magnético disperso e de proximidade devido o possível contato direto) não afeta o valor de T_C da camada de Nb, conforme experimentalmente constatado [36].

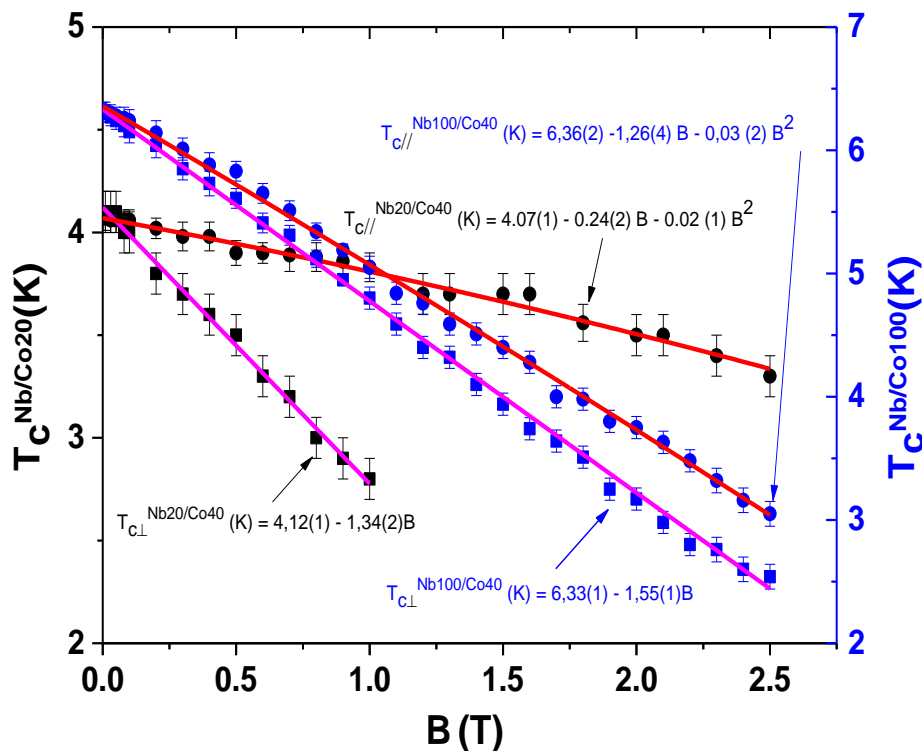


Figura 4.15: Comportamento de T_C em função do campo magnético aplicado (B) para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 (símbolos pretos) e Nb100/Cu5/Co40 (símbolos azuis). Os círculos completos correspondem aos dados na configuração $B_{c2\parallel}$, enquanto os quadrados são devidos aos dados na

configuração $B_{C2\perp}$. As linhas que passam pelos dados experimentais correspondem aos ajustes usando funções.

Na Figura 4.16 é mostrado o comportamento do parâmetro $\Delta T_C(B)$ obtido a partir dos dados dispostos na Figura 4.15 para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 e Nb100/Cu5/Co40. Enquanto um ajuste linear foi obtido para o filme híbrido Nb20/Cu5/Co40, uma função do tipo exponencial foi usada para analisar os dados do filme híbrido Nb100/Cu5/Co40 até campos de 1,3 T. As funções e seus coeficientes, obtidas dos ajustes dos dados experimentais, também são mostradas na Fig. 4.16. Dessa forma, comparando os resultados de Nb20 (Fig. 4.9) e os dos filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 (Fig. 4.16), mudanças mensuráveis nos valores de $\Delta T_C(B)$ são observadas, ou seja, na faixa de campos baixos (< 1 T), as taxas de variação de ΔT_C para esses sistemas são respectivamente de 1,14(1) K/T e 1,04(2) K/T. Logo, há uma diferença de 0,10(2) K/T, que é atribuída exclusivamente à camada FM de Co. Por outro lado, enquanto um regime de saturação de $\Delta T_C(B)$ ocorre para o filme de Nb100 puro (Fig. 4.9), os dados $\Delta T_C(B)$ do filme híbrido Nb100/Cu5/Co40 parecem “oscilar (flutuar)” quando a intensidade do campo magnético aplicado é superior a 1,3 T (região de alto campo).

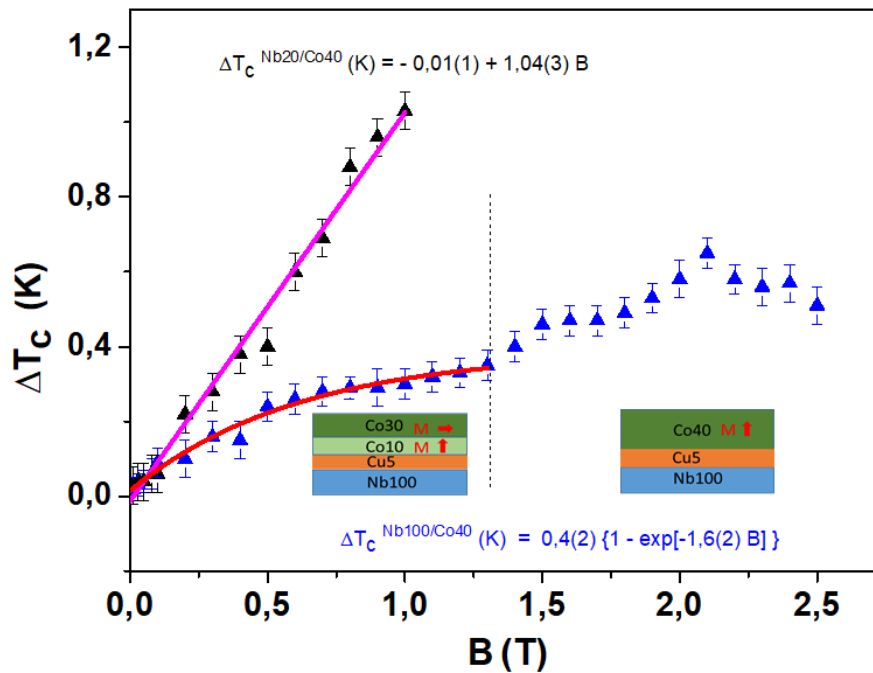


Figura 4.16: Comportamento anisotrópico da temperatura crítica (ΔT_c) em função do campo aplicado B para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 (triângulos pretos) e Nb100/Cu5/Co40 (triângulos azuis). Esses dados são obtidos dos dados mostrados na Fig.4.15. Linhas sólidas são resultados dos ajustes. Esquemas de filmes híbridos mostrados na parte inferior da curva (triângulos azuis) são para representar o campo não homogêneo (variação na configuração de spins) na amostra Nb100/Cu5/Co40 em função de B .

A Figura 4.17 corresponde a parte dos dados apresentados nas Figuras 4.9 e 4.15 [comportamento de $\Delta T_c(B)$ para campos magnéticos inferiores a 1 T para as amostras de Nb100 e híbrida Nb100/Cu5/Co40]. Ambas as curvas de $\Delta T_c(B)$ foram ajustadas com funções puramente exponenciais. Os valores de $\Delta T_c(B)$ são muito mais suprimidos para o filme híbrido Nb100/Cu5/Co40 do que para a amostra de Nb100 pura, semelhante ao observado para os filmes correspondentes para espessura mais fina da camada de Nb ($d_{\text{Nb}} = 20 \text{ m}$). Portanto, essa diferença mensurada no comportamento de $\Delta T_c(B)$ das amostras Nb100 [comportamento do tipo exponencial sugerido pela Eq. (4.7)] e híbrido Nb100/Cu5/Co40, pode definitivamente ser atribuído à influência da camada FM de Co. Em particular, sua origem pode ser atribuída a dois efeitos: (i) campo magnético disperso da camada FM e (ii) efeito da transição do estado SC singleto (S) para tripleto (T), ocasionado pelo efeito de campo magnético interno não homogêneo na camada FM de Co (duas frações de spins da camada FM de Co: spins- \perp e spins- \parallel). A transição dos pares de Cooper S-T é reportada na

literatura como sendo a única causa da variação de T_c em VSS e sua explicação tem sido dada assumindo que os pares de Cooper entram em regiões ferromagnéticas não homogêneas e ganham energia, favorecendo a transição S-T [93].

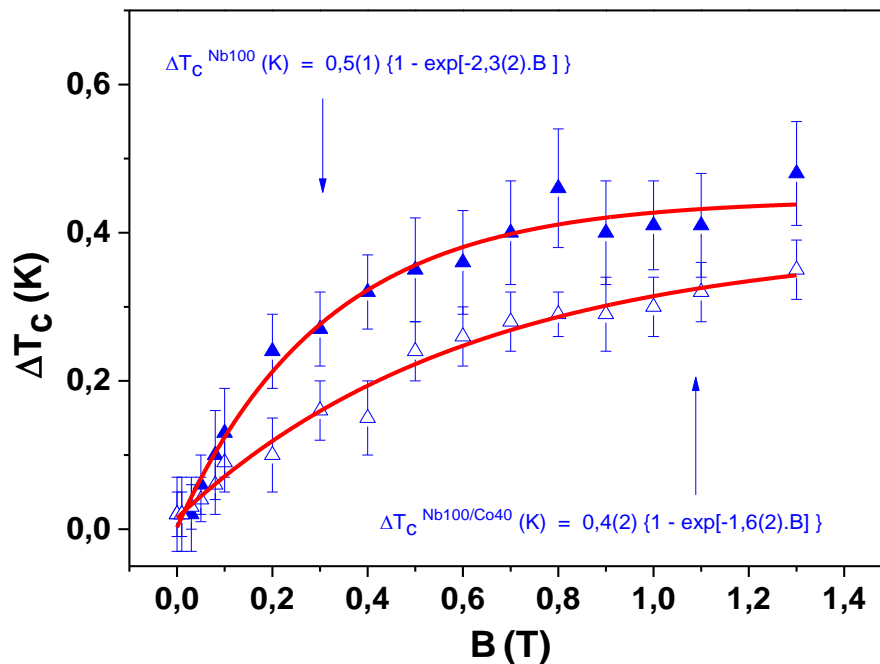


Figura 4.17: Comportamento da variação da temperatura crítica (ΔT_c) em função de B para os filmes Nb100 (triângulos azuis completos) e Nb100/Cu5/Co40 (triângulos azuis abertos). Linhas sólidas são resultados dos ajustes, com funções do tipo exponencial indicadas na figura.

No nosso caso, comparando com os dados de $\Delta T_c(B)$ da Fig. 4.9 (filmes controle SC de Nb) e da Fig.4.17 (filmes híbridos Nb/Cu/Co), fica claro que a camada FM (Co) está afetando as propriedades supercondutoras dos filmes de Nb de maneira diferente. Na amostra híbrida Nb20/Cu5/Co40, a camada FM (Co) provoca alterações na taxa de $\Delta T_c(B)$ com um comportamento linear. No entanto, para o filme híbrido Nb100/Cu5/Co40, dois regimes são observados. No Regime I, para campos menores que 1,3 T, é encontrada uma tendência exponencial, mas com coeficientes diferentes quando comparados ao filme Nb puro. No Regime-II, para faixa de campo ($> 1,3$ T), além do comportamento exponencial encontrado no filme puro de Nb100, a grandeza $\Delta T_c(B)$ do sistema

híbrido parece ter uma contribuição adicional que leva a uma pequena flutuação (oscilação) no comportamento de $\Delta T_c(B)$.

É factível então dizer que a diferença de $\Delta T_c(B)$ nos comportamentos dos filmes de Nb mais finos e mais espessos (Figs. 4.9 e 4.16) deve, em primeiro lugar, ser associada à anisotropia dos filmes SC de Nb induzida pelo efeito de sua espessura (d_{Nb}). Para filmes mais finos de Nb (sistema puro ou híbrido), um comportamento linear é experimentalmente encontrado e teoricamente previsto pela Eq. (4.8) para o comportamento de $\Delta T_c(B)$ (alto efeito anisotrópico devido ao efeito de espessura da camada SC). Entretanto, é também nítida a influência da camada FM de Co nas propriedades SC da camada de Nb nos sistemas híbridos Nb/Co, conforme já previamente discutido. Para aprofundar um pouco mais na discussão, é necessário observar os dados dos laços $M(B)$ anteriormente discutidos para os filmes a base de Co. Os laços $M(B)$ dos filmes híbridos Nb20/Cu5/Co40 e Nb100/Cu5/Co evidenciaram claramente a existência de duas contribuições de magnetizações (spins de Co): a fração spins- \perp e a outra com spins- \parallel . Esses domínios magnéticos geram campos não homogêneos que, por sua vez, favorecem, por exemplo, o efeito de proximidade supercondutor (transição S-T), mas também provoca um valor significativo para o campo magnético disperso da camada FM sobre a camada SC de Nb. Então, essas duas contribuições não podem ser mutuamente excluídas e o mais interessante, como será mostrado mais adiante, o campo magnético disperso (até então praticamente desconsiderado) tem um papel importante no efeito de válvula de spin supercondutora (variação de T_c supercondutor devido mudanças nas estruturas magnéticas)

Em particular, sobre o comportamento de $\Delta T_c(B)$ encontrado no filme de Nb100/Cu5/Co40 para campos acima de 1,3 T [Fig. 4.16] e com o esquema de spins do Co descrito na seção 4.3.1 (fração de spin- \perp mudando gradualmente com a magnitude do campo aplicado), a flutuação (oscilação) no comportamento exponencial (observado no filme de Nb100) do filme híbrido Nb100/Cu5/Co40, foi anteriormente encontrada em multicamadas Nb/Gd e esse tipo de oscilação nos valores de T_c SC foi atribuída a polarização dos pares de Cooper pela mudança de orientação das camadas FM quando sua espessura é mudada [81]. Em outras palavras, os autores demonstraram que há alterações nos valores de

T_c , provocando um comportamento do tipo oscilatório de T_c , quando a espessura da camada FM (Gd) é alterada.

No nosso caso, a diferença no comportamento de $\Delta T_c(B)$ observada entre os dados dos filmes controle de Nb100 e híbrido Nb100/Cu5/Co40 também podem estar associados, além do mencionado acima [81], aos efeitos de campo magnético disperso e de proximidade [21,35,117]. Ademais, em campos altos aplicados, os dados de $\Delta T_c(B)$ sugerem que, mesmo que seja assumida a principal contribuição devido ao efeito de proximidade e alterações adicionais na fração de spin (spin-|| para spin- \perp quando a magnitude do campo aplicado aumenta), o campo não homogêneo da camada de Co não está resultando em uma modificação suave de T_c devido à transição S-T dos pares de Cooper reportada na literatura [21,35].

Finalmente, objetivando quantificar o valor do campo magnético disperso da camada FM nos filmes híbridos, o modelo anisotrópico G-L será aplicado no caso dos filmes menos espesso, onde o comportamento linear de $\Delta T_c(B)$ foi experimentalmente observado (Fig. 4.16). De acordo com o modelo proposto, os dados sugerem que para essas condições experimentais, temos a seguinte condição:

$$\frac{1}{\gamma} \frac{B_{ef}(B)}{B_{C2\perp Nb20/Co40}(0)} \ll 1$$

onde agora B_{ef} deve ser entendido como um campo magnético efetivo experimentado pela camada supercondutora de Nb devido as duas principais fontes: campo magnético aplicado e campo magnético disperso da camada FM (o campo gerado pela magnetização induzida pelo campo aplicado tem sido desconsiderada em primeira aproximação). Sob essas condições, a Eq. (4.8) é reescrita da seguinte maneira:

$$\Delta T_c(B) = \frac{T_{C\perp Nb20/Co40}(0)}{B_{C2\perp Nb20/Co40}(0)} B_{ef}(B) \quad (4.10)$$

onde $B_{ef} = B + B_{Co}(B)$ com B sendo o vetor campo aplicado e $B_{Co}(B)$ relacionado com o vetor campo magnético disperso da camada FM (Co) sentido pela camada supercondutora. Observe que o campo magnético disperso da camada FM de Co [$B_{Co}(B)$] também depende do campo aplicado B , resultado que está intimamente relacionado com o comportamento magnético da camada ferromagnética mostrado nos laços $M(B)$ [duas frações de spins de Co (spin- \perp e spin- \parallel)]. Os dados de magnetização da camada de Co para configuração de campo B_{\perp} sugerem que há uma mudança praticamente linear nos valores da magnetização à medida que a intensidade do campo aplicado B aumenta até antes do regime de saturação, que ocorre acima de 2 T. Considerando os resultados mostrados na Fig. 4.11 (a) e (c) e as discussões sobre elas feitas, é plausível de se assumir que haja, em primeira aproximação, uma dependência linear do campo magnético disperso da camada de Co dada por: $B_{Co}(B) = \varphi_{Co} + \beta_{Co}B$. Então, incluindo todas essas considerações, a Eq. (4.10) pode ser novamente reescrita como:

$$\Delta T_c(B) = \frac{T_{C \perp Nb20/Co40}(0)}{B_{C2 \perp Nb20/Co40}(0)} \varphi_{Co} + \frac{T_{C \perp Nb20/Co40}(0)}{B_{C2 \perp Nb20/Co40}(0)} (\beta_{Co} + 1)B \quad (4.11)$$

Sendo assim, a Eq. (4.11) realmente nos fornece uma relação linear para dependência de $\Delta T_c(B)$, como experimentalmente demonstrado com os dados exibidos na Fig. 4.16. Ademais, a Eq. (4.11) fornece diretamente informações sobre o campo magnético disperso da camada FM (Co) para a condição de campo B nulo, ou seja, $B_{Co}(0)$. Essa quantidade é identificada com o coeficiente linear φ da Eq. 4.11. Finalmente, usando os valores determinados experimentalmente acima [$T_{C \perp Nb20/Co40} = 4,12(2)$ K e $B_{C2 \perp Nb20/Co40}(0) = 3,1(1)$ T] e o coeficiente linear [obtido a partir do ajuste linear dos dados de $\Delta T_c(B)$ (Fig.4.15)], o valor de $B_{Co}(0)$ é calculado, ou seja, $B_{Co}(0) = -(8,5 \pm 0,1)$ mT.

Voltando ao problema clássico de campo magnético disperso (*stray field*) de um filme fino com magnetização uniforme, geralmente considera o fator de desmagnetização e/ou geometria simples da amostra (por exemplo, planos

infinitos), que fornece expressões simples para o vetor campo B (indução magnética). Em geral, os valores do campo magnético disperso é nulo para regiões fora do filme, quando a magnetização estiver no estado saturado. Todavia, para obter valores reais de campos dispersos em filmes finos FM é preciso considerar efeitos realistas de tamanho finito, geometria da amostra, magnetização não uniforme, entre outros [117], pois como mostrado acima há um campo magnético disperso devido a camada FM de Co com domínios não saturados e produzindo magnetização não homogênea.

Do ponto vista físico, o campo magnético disperso tem, pelo menos, duas fontes: (i) desmagnetização não uniforme e (ii) campos uniaxiais complexos (grãos tipo agulhas cruzados). No nosso caso, a primeira fonte advém da existência de duas frações de spins (\perp e \parallel) na camada FM (Co) em campo zero (magnetização não homogênea), enquanto a segunda fonte é devida ao procedimento de preparação da camada de Co, onde a anisotropia uniaxial é induzida pelo efeito de sombra [28]. Assim, considerando os pontos acima, o valor de $-(8,5 \pm 0,1) \text{ mT}$ parece ser consistente com o campo de poucos Gauss (G), relatado na literatura para camadas FM [117]. O campo de troca da camada FM que polariza os spins dos elétrons da camada espaçadora de Cu não pode ser completamente descartado, mas não temos nenhuma evidência de sua contribuição direta, exceto pelo comportamento mostrado na Fig. 4.13(b). Todavia, essa contribuição não será analisada nesse trabalho de tese e pode ficar como trabalhos futuros dentro do grupo.

Voltando a análise, cabe também ressaltar que o coeficiente β representa fisicamente a taxa de variação da reorientação dos spins do Co do plano para fora do plano (spin- \parallel para spin- \perp) com o campo aplicado B, $\beta_{Co} = \frac{dB_{Co}}{dB}$, ou seja, nos dá informações da modificação na estrutura de spins (domínios magnéticos da camada), e conseqüentemente da modificação do campo magnético disperso da camada FM influenciada pelo campo magnético aplicado B. Então, levando em consideração $T_{c\perp Nb20/Co40} = 4,12(2) \text{ K}$ e $B_{C2\perp Nb20/Co40}(0) = 3,1(1) \text{ T}$, como discutido anteriormente, o valor de $\beta = \frac{dB_{Co}}{dB} = (-0,22 \pm 0,02)$ é quantificado.

Um ponto interessante a ser observado, antes de efetivamente finalizar esta seção, é que a abordagem teórica demonstrada nesta tese é um ponto de partida para quantificar os possíveis efeitos das camadas FM em filmes finos SC.

Seguindo esse raciocínio, será então estudado também o campo magnético disperso (*stray field*) da camada de Py em filmes híbridos SC/Py e nas VSS nas próximas seções.

4.4.2 Determinação do Campo Magnético Disperso (*Stray Field*) da Camada de Py (B_{Py}) em Filmes Híbridos Nb/Cu/Py

Como discutido anteriormente para os filmes híbridos Nb/Cu/Co, foram tomadas medidas de magneto-transporte $R(T,B)$ em um intervalo de temperatura próximo ao valor de T_c dos filmes de Nb nos sistemas híbridos Nb20/Cu5/Py2 e Nb100/Cu5/Py2 para as configurações B_{\perp} (perpendicular ao plano do filme) e $B_{//}$ (paralela ao plano do filme). Na Figura 4.18 é apresentado um conjunto de curvas normalizadas $R(T)/R_0$ dos filmes híbridos Nb20/Cu5/Py2 (a) e Nb100/Cu5/Py2 (b), com os valores de campo aplicados estão indicados (lado esquerdo: $B_{//}$ e lado direito: B_{\perp}). Como já visto para o sistema Nb/Cu/Co, o efeito anisotrópico dos filmes SC de Nb está também evidenciado pela mudança mais pronunciada nos valores de T_c na configuração de campo B_{\perp} quando comparada com a variação tomada na configuração de campo $B_{//}$ (mesmos campos) em ambos os filmes híbridos Nb/Cu/Py.

Ainda como relatado anteriormente, os valores de T_c dos filmes de Nb são, em sistemas híbridos, reduzidos quando comparados com os valores de T_c dos filmes puros para mesmas espessuras de Nb (d_{Nb}). Como a redução no T_c dos filmes de Nb no sistema Nb/Cu/Py foi menor do que no sistema híbrido Nb/Cu/Co (comparado com os respectivos filmes puros de Nb), dois filmes novos (Nb20 e Nb20/Cu/Py) foram preparados e os resultados aqui discutidos foram similares.

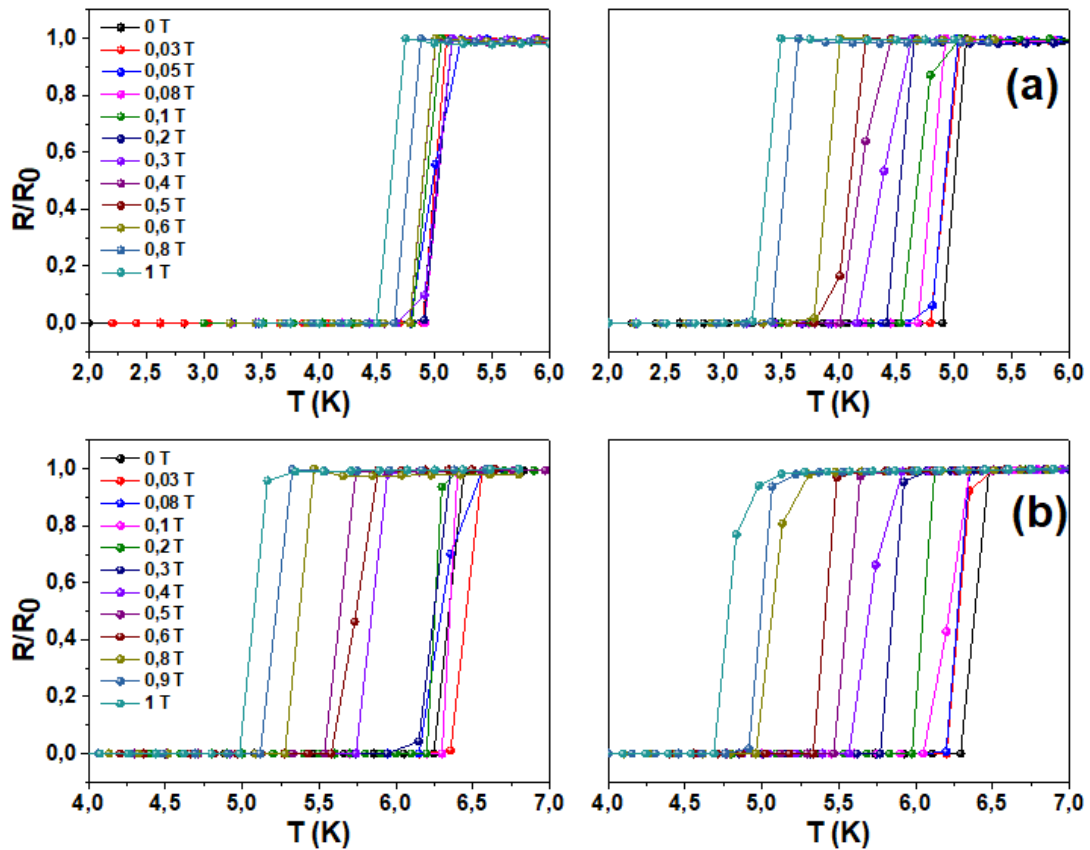


Figura 4.18: Curvas de $R(B,T)/R(B=0, T=10\text{ K})$ (ou simplesmente $R(T)/R_0$) para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Py2 (a) e Nb100/Cu5/Py2 (b). Os experimentos foram realizados nas duas configurações de campo aplicado: ($B_{||}$: lado esquerdo) ou perpendicular (B_{\perp} : lado direito) ao plano da amostra. Os valores de campos estão indicados na figura.

Usando a metodologia acima aplicada e fazendo uso dos dados de T_c tomados da Fig. 4.18, foi construída a Figura 4.19 que sugere os comportamentos de $T_c(B)$ dos filmes híbridos Nb20/Cu5/Py2 e Nb100/Cu5/Py2 para as configurações de campos $B_{||}$ (círculos completos) e B_{\perp} (quadrados completos). Em primeiro lugar, essa figura alega a observação de que há pequenas diferenças entre $T_{c\perp}(B)$ (quadrados) e $T_{c||}(B)$ (círculos) nos filmes híbridos Nb100/Cu5/Py2, mas significativas diferenças no filme híbrido Nb20/Cu5/Py2, especialmente para campos aplicados acima de 0,3 T.

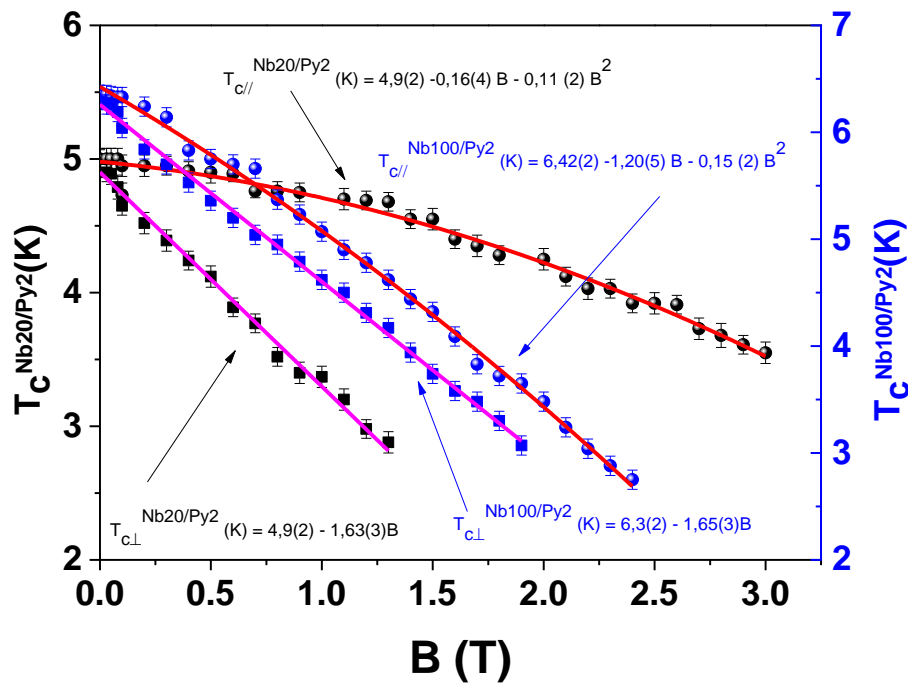


Figura 4.19: Comportamento de T_C em função do campo magnético aplicado (B) para filmes de Nb20/Cu5/Py (símbolos pretos) e Nb100/Cu5/Py (símbolos azuis). Os círculos completos correspondem aos dados na configuração $B_{C2||}$, enquanto os quadrados são devidos aos dados na configuração $B_{C2\perp}$. As linhas que passam pelos dados experimentais correspondem aos ajustes funções mostradas na figura.

Os dados experimentais de $T_C(B)$ da Fig. 4.19 foram também ajustados com funções lineares e quadráticas previstas pelo modelo GL, conforme discutidos no início deste capítulo (Seção 4.1). Em particular, os dados de $T_{C\perp}(B)$ apresentam o comportamento linear [Eq. (4.5)], com os seguintes coeficientes para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Py2 e Nb100/Cu5/Py2: $T_{C\perp} = 4,9(1)$ e $6,35(2)$ K e $B_{C2\perp}(0) = 3,0(5)$ e $3,9(2)$ T. Quando esses valores são comparados com aqueles obtidos nos filmes SC controles (Nb20 e N100), as seguintes mudanças relativas foram calculadas: 4% para $T_{C\perp}$ e 35% para $B_{C2\perp}(0)$; mudanças atribuídas principalmente a camada FM de Py, já que os filmes replicados apresentaram valores similares de T_C (principalmente os filmes de Nb puros).

Na Figura 4.20 são então mostrados os comportamentos de $\Delta T_C(B)$ para os filmes híbridos Nb20/Cu5/Py2 e Nb100/Cu5/Py2. Como também observado nos filmes controle SC de Nb puro e híbridos Nb/Co, um comportamento linear de $\Delta T_C(B)$ é encontrado para o filme híbrido Nb20/Cu5/Py2, enquanto um do tipo

exponencial (saturação) ocorre para o filme híbrido Nb100/Cu5/Py2. Mais uma vez, comparando os resultados dos filmes controle SC Nb20 (Fig. 4.9) e Nb20/Cu5/Py2 (Fig. 4.20), são notadas mudanças significativas nos valores dos coeficientes angulares de $\Delta T_c(B)$ destes sistemas, ou seja, 1,14(1) K/T para o filme controle SC Nb20 e 1,35(4) K/T para o filme híbrido Nb20/Cu5/Py2. O aumento relativo da taxa de crescimento de $\Delta T_c(B)$ de 0,21(2) K/T é atribuída à camada FM de Py. Quando comparado com o filme híbrido Nb20/Cu5/Co40, há também um aumento significativo no valor de taxa do sistema a base de Py, indicando que a supressão nos valores de T_c dos filmes híbridos de Nb20/Cu5/Py2 será maior do que nos híbridos Nb20/Cu5/Co40.

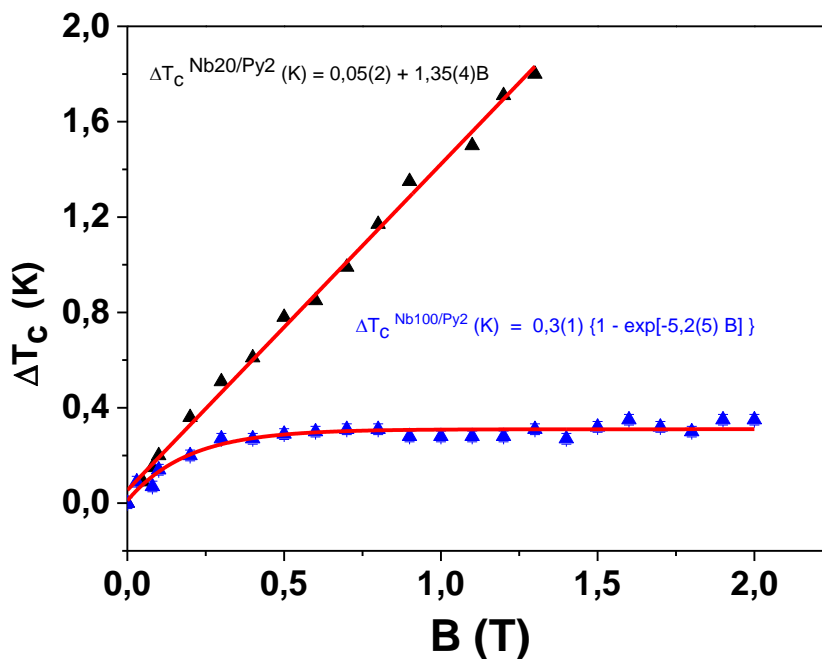


Figura 4.20: Comportamento anisotrópico da temperatura crítica (ΔT_c) em função do campo aplicado B para os filmes de Nb20/Cu5/Py2 (triângulos pretos) e Nb100/Cu5/Py2 (triângulos azuis). Esses dados são obtidos dos dados mostrados na Fig. 4.20. As linhas sólidas são os resultados dos ajustes.

Como observado para o filme híbrido Nb100/Cu5/Co40, onde o comportamento de $\Delta T_c(B)$ apresentou uma forte flutuação (oscilação) de $\Delta T_c(B)$ em altos campos, no filme híbrido Nb100/Cu5/Py2 as oscilações nos valores de $\Delta T_c(B)$ parecem ser periódicas, mas de menores intensidades (quase dentro do erro da medida) do que no sistema Nb100/Cu5/Co40. Por um lado, não foi

objetivo desta tese fazer um estudo da origem física desse fenômeno, mas o comportamento do tipo “oscilatório” de $\Delta T_c(B)$ pode estar ligado a mudança na estrutura de spins da camada FM à medida que a intensidade do campo B (oscilação no valor de T_c foi medida em filmes de Nb sanduichados com camadas FM de diferentes espessuras [71]). Entretanto, em uma primeira aproximação, os dados de $\Delta T_c(B)$ do filme híbrido Nb100/Cu5/Py2 foram simplesmente ajustados com uma função do tipo exponencial pura em todo intervalo de campo B, conforme previsto pela Eq. (4.7) para o caso em que o coeficiente anisotrópico SC γ (definido acima) seja não significativo.

Para efeito comparativo, na Figura 4.21 são mostrados os comportamentos de $\Delta T_c(B)$ para os filmes controle SC Nb100 e híbrido Nb100/Cu5/Py2, com as respectivas funções exponenciais usadas nos ajustes dos dados experimentais de $\Delta T_c(B)$. Assim, é possível notar que os valores de $\Delta T_c(B)$ entre os dois filmes se tornam mais distintos para valores de $B > 0,5$ T e que os valores de $\Delta T_c(B)$ são reduzidos no filme híbrido Nb100/Cu5/Py2 quando comparados com os do filme controle SC Nb100. Como a camada de Py só atingir a saturação (na configuração de campo B_{\perp}) próximo a 1,0 T em baixas temperaturas, essas mudanças em $\Delta T_c(B)$ no filme híbrido Nb100/Cu5/Py2 são mensuráveis acima desse valor de campo, conforme experimentalmente mostrado na Fig. 4.21.

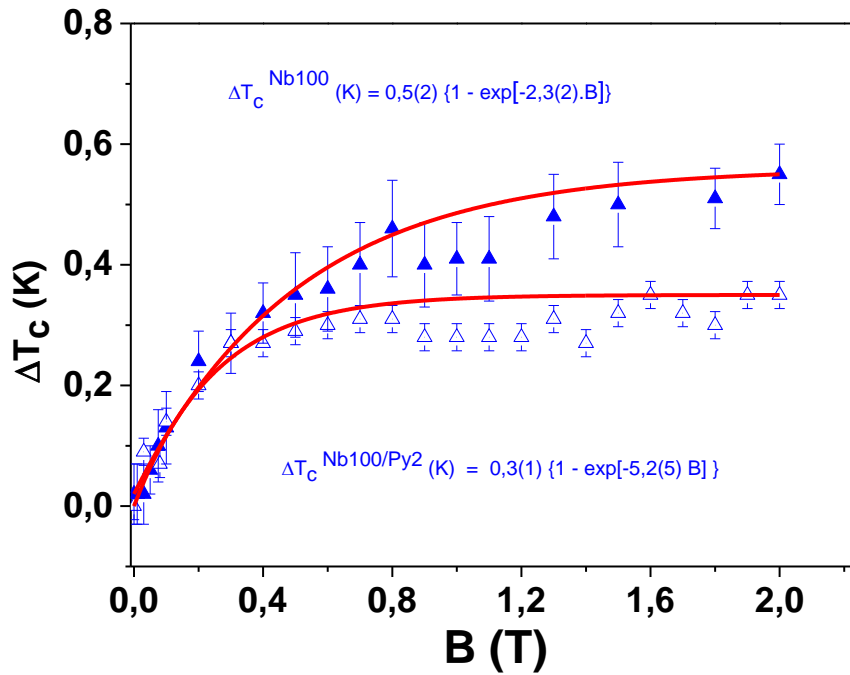


Figura 4.21: Comportamento da variação da temperatura crítica (ΔT_c) em função de B para os filmes de Nb100 (triângulos azuis completos) e Nb100/Cu5/Py2 (triângulos azuis abertos). As linhas sólidas são devidas aos ajustes com funções do tipo exponencial, conforme equações indicadas na figura.

Para efeito do cálculo do campo magnético disperso (*stray field*) da camada FM de Py sobre a camada de Nb, a mesma condições de redirecionamento da magnetização da camada FM de Py na configuração de campo B_{\perp} será assumida, ou seja, crescimento linear da magnetização à medida que a intensidade do campo aplicado B aumenta até atingir a saturação dos spins da camada de Py em 1,0 T, conforme sugerem os dados de $M(B)$ [Fig. 4.11(d)] tomados em baixas temperaturas (3 e 10 K). Como há também um crescimento linear da magnetização com a intensidade do campo B , é novamente possível assumir $B_{Py}(B) = \varphi_{Py} + \beta_{Py}B$, onde o $B_{ef} = B + B_{Py}(B)$. Assim, a Eq. (4.12) é agora reescrita como:

$$\Delta T_c(B) = \frac{T_{C \perp Nb20/Py2}(0)}{B_{C2 \perp Nb20/Py2}(0)} \varphi_{Py} + \frac{T_{C \perp Nb20/Py2}(0)}{B_{C2 \perp Nb20/Py2}(0)} (\beta_{Py} + 1)B \quad (4.12)$$

Lembrando que o coeficiente φ_{Py} corresponde ao valor do campo magnético disperso na ausência de campo magnético aplicado ($B = 0$ T). Dessa forma, usando (i) os coeficientes (angular e linear) da função linear usada para ajustar os dados experimentais de $\Delta T_c(B)$ e (ii) os valores experimentalmente determinados para $T_{c\perp Nb20/Py2} = 4,9(1)$ K e $B_{C2\perp Nb20/Py2}(0) = 3,0(5)$ T, um valor de $\varphi = B_{Py}(0) = +(31,0 \pm 0,3)$ mT foi calculado. Por outro lado, o coeficiente $\beta_{Py} = \frac{dB_{Py}}{dB}$, que dá informação sobre o efeito de reorientação do spin do Py [do plano (spin-||) para perpendicular ao plano do filme (spin- \perp)], foi calculado como sendo $\beta_{Py} = \frac{dB_{Py}}{dB} = (-0,17 \pm 0,02)$, inferior ao valor obtido para a taxa de mudança de spin da camada de Co [$\beta_{Co} = \frac{dB_{Co}}{dB} = (-0,22 \pm 0,02)$].

Em resumo, a constatação experimental de que o valor maior do campo magnético disperso da camada de Py [$B_{Py}(0) = +(31,0 \pm 0,3)$ mT] ser maior do que o da camada de Co $B_{Co}(0) = -(8,5 \pm 0,1)$ mT será importante na discussão do efeito VSS, medidos através de comparações com os dados de filmes controle de Nb (d_{Nb}) em curvas de $\Delta T_c(B, \theta)$. É interessante notar que (i) os sinais dos campos magnéticos dispersos são distintos para as camadas Co (negativo) e Py (positivo), cuja explicação física plausível ainda não é possível e (ii) as taxas de mudanças nas estruturas de spins são distintas para as camadas de Py (menor) e Co (maior), algo fisicamente aceitável se for considerado o fato de que a camada de Co tem duas estruturas de spins de partida e com uma fração no plano com maior anisotropia. Essas características são importantes e ajudam a melhor entender o efeito do campo magnético disperso em heteroestruturas híbridas VVS a serem discutidas na próxima seção.

4.4.3 Determinação do Campo Magnético Disperso (*Stray Field*) das Camadas de Py e Co em Filmes Híbridos tipo Válvulas de Spin Supercondutora (SSV) Nb/Cu/Py/Cu/Co

Por fim, o estudo aplicado para os filmes híbridos controles Nb (20 ou 100)/Cu5/Py2 e Nb(20 ou 100)/Cu5/Co40 será estendido para as respectivas

VSS (VSS20 e VSS100), cujos dados de $R(T,B)$ para as configurações de campo $B_{||}$ (lado esquerdo da figura) e B_{\perp} (lado direito da figura) são apresentadas na Figura 4.23. Como nos casos anteriores, devido ao efeito anisotrópico definido pela espessura da camada de Nb (d_{Nb}), a supressão de T_C na configuração de B_{\perp} é maior do que aquela observada na configuração $B_{||}$ para ambas as VSS [VSS20 (a) e VSS100 (b)]. Os valores de T_C das VSS são inferiores aos valores de T_C dos filmes controles (puros e híbridos), indicando que os efeitos das camadas FM são adicionados nas VSS.

Ademais, os dados do filme VSS20 [Fig. 4.22 (a) - para ambas configurações de B (B_{\perp} e $B_{||}$)] apresentam um “pico” nas curvas $R(T)/R_0$, que também foram observados por Tales [36] e explicado como sendo devido ao caráter granular dos filmes de Nb. Embora, esse pico nas curvas nas curvas $R(T)/R_0$ não foi observado para nenhuma das outras amostras (sistemas puros SC ou híbridos SC/FM), vale frisar que o intervalo de temperatura que ele ocorre é muito pequeno e não foi investigado neste trabalho. Tales sugeriu que em sistemas granulares o pico surgiria devido à transição do estado SC para um estado tipo isolante, formando assim um material com múltiplas junções tipo Josephson [36].

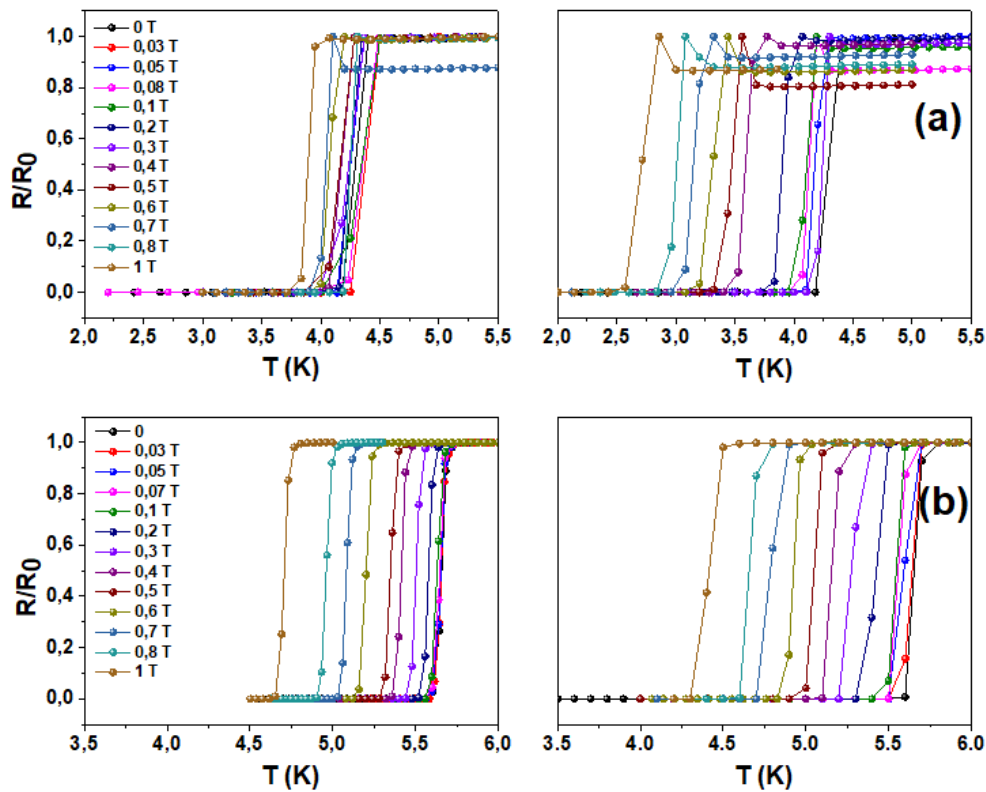


Figura: 4.22: Curvas de $R(B,T)/R(B = 0, T = 10 \text{ K})$ (ou simplesmente $R(T)/R_0$) para heteroestruturas híbridas do tipo válvula de spin supercondutora VSS20 (a) VSS100 (b). Os experimentos foram realizados nas duas configurações de campo aplicado: paralelo ($B_{||}$: lado esquerdo) ou/e perpendicular (B_{\perp} : lado direito) ao plano da amostra.

Na Figura 4.23 [construída com dados apresentados na Fig. 4.22] são mostrados os comportamentos de $T_c(B)$ dos sistemas híbridos VSS20 e VSS100 para as configurações de campos $B_{||}$ (círculos completos) e B_{\perp} (quadrados completos). Vários os efeitos (diferentes magnitudes é claro) acima discutidos nos filmes controles (puro e híbridos) são reproduzidos nas VSS, ou seja, pequenas diferenças entre $T_{c\perp}(B)$ (quadrados) e $T_{c||}(B)$ (círculos) para o sistema mais espesso (VSS100), mas significativas mudanças nos valores de $T_{c\perp}$ e $T_{c||}$ no sistema VSS20 para campo B superior a 0,3 T. Os dados experimentais de $T_c(B)$ são ajustados com funções adequadas aos seus comportamentos (linhas magentas para os ajustes polinomiais e linhas vermelhas para ajustes lineares). Sendo assim, os seguintes parâmetros foram respectivamente obtidos para as VSS20 e VSS100: $T_{c\perp}(0) = 4,2(2)$ e $5,5(1)$ K e $B_{c2\perp}(0) = 2,7(1)$ e $3,8(1)$ T. As alterações relativas, em relação aos filmes controles de Nb, nos valores de $T_c(0)$

e $B_{c2\perp}(0)$ mudam em aproximadamente em 16% e 28% para as VSS20 e VSS100, respectivamente.

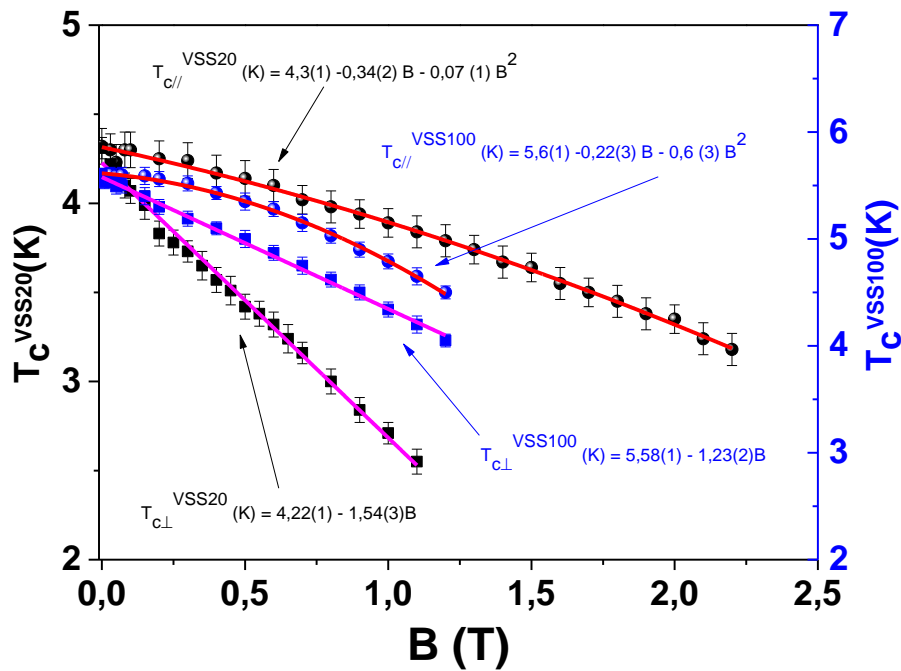


Figura 4.23: Comportamento de T_c em função do campo magnético aplicado (B) para os sistemas híbridos VSS20 (símbolos pretos) e VSS100 (símbolos azuis). Os círculos completos correspondem aos dados na configuração $B_{c2\parallel}$, enquanto os quadrados são devidos aos dados na configuração $B_{c2\perp}$. As linhas que passam pelos dados experimentais correspondem aos ajustes usando funções.

Na Figura 4.24 [construída a partir dos dados da Fig. 4.23] são mostrados os comportamentos de $\Delta T_c(B)$ para os sistemas VSS20 (triângulos pretos) e VSS100 (triângulos azuis). Como nos sistemas controles (Nb puro e híbrido controle), os dados de $\Delta T_c(B)$ do filme VSS20 tem um comportamento linear e, portanto, foi ajustado com a função linear indicada na Fig. 4.24, enquanto que uma função exponencial foi utilizada para ajustar os dados do filme VSS100. Para o intervalo de campo aplicado ($B < 1$ T), $\Delta T_c(B)$ do filme VSS100 também apresenta um comportamento do tipo exponencial sem oscilações, conforme observado em todos os sistemas controles (puro e híbridos). Os valores de $\Delta T_c(B)$ são mais afetados nas VSS do que nas amostras controles (puro e híbridas), indicando que o efeito conjugado das camadas FM tem um papel importante nas VSS.

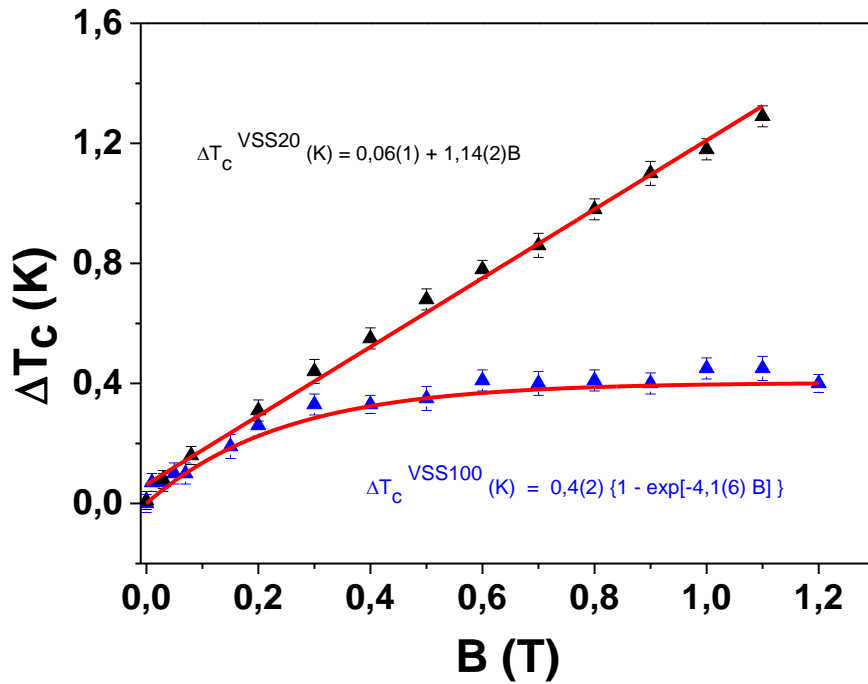


Figura 4.24: Comportamento anisotrópico da temperatura crítica (ΔT_c) em função do campo aplicado (B) para os filmes de VSS20 (triângulos pretos) e VSS100 (triângulos azuis). Esses dados foram obtidos dos dados mostrados na Fig.24. Linhas sólidas são resultados dos ajustes.

Usando a sistemática aplicada anteriormente para cálculo do campo magnético disperso (*stray field*), ou seja, as mesmas suposições [crescimento linear da $M(B)$ [Fig. 4.12 (d)], conseqüentemente $B_{FM}(B)$] o campo magnético efetivo (B_{ef}) atuando na camada SC de Nb será a soma vetorial dada por: $B_{ef} = B + B_{Py/Co}(B)$, agora com $B_{Py/Co}(B)$ sendo o campo magnético disperso das duas camadas FM (Py e Co). Dessa forma, o valor do campo disperso das camadas $FM_{1,2}$ é calculado e ajuda a entender o funcionamento das válvulas de spin supercondutoras VSS, aqui preparadas. Então, a dependência do campo magnético disperso das camadas $FM_{1,2}$ tem a relação : $B_{Py/Co}(B) = \varphi_{Py/Co} + \beta_{Py/Co}B$, tal que a Eq. (4.13), que tem uma relação linear com B , possa ser escrita:

$$\Delta T_c(B) = \frac{T_{C \perp Nb20/Py/Co}(0)}{B_{C2 \perp Nb20/Py/Co}(0)} \varphi_{Py/Co} + \frac{T_{C \perp Nb20/Py/Co}(0)}{B_{C2 \perp Nb20/Py/Co}(0)} (\beta_{Py/Co} + 1)B \quad (4.13)$$

A Eq. (4.13) fornece, quando aplicada a dados experimentais, o campo disperso das camadas FM (Py e Co) em campo nulo, ou seja, $\varphi_{Py/Co} = B_{Py/Co}(0)$. Usando os valores experimentalmente determinados acima [$T_{c\perp}(0) = 4,2(2)$ K e $B_{c2\perp}(0) = 2,7(1)$ T] e com os coeficientes (linear e angular) das funções que ajustaram os dados experimentais de $\Delta T_c(B)$ [Fig. 4.24], o campo magnético disperso foi calculado como sendo $B_{Py/Co}(0) = +(38,0 \pm 0,4)$ mT, valor este dominado pela contribuição da camada de Py. Do coeficiente angular da reta que ajusta $\Delta T_c(B)$, o valor de $\beta_{Py/Co} = \frac{dB_{Py/Co}}{dB} = (-0,26 \pm 0,02)$ foi determinado. Esse termo $\beta_{Py/Co}$, que mede a taxa de mudança do campo magnético disperso com a modificação do campo aplicado, é maior do que nos filmes finos controles híbridos (SC/FM).

4.5 Determinação do Efeito Válvula de *Spins* Supercondutora nos Filmes Híbridos Controles (Nb/Cu/Py e Nb/Cu/Co) e nas Válvulas de *Spin* Supercondutoras (Nb/Cu/Py/Cu/Co)

O efeito de válvula de spin (VSS) supercondutora tem sido associado as mudanças adicionais (além do campo magnético, por exemplo) na temperatura de transição SC-N quando as orientações da magnetização de camadas FM são relativamente modificadas pela presença de um campo magnético externo B. Portanto, para medir o efeito VSS é necessário fazer uma comparação do efeito do campo magnético aplicado B entre um filme controle SC e o seu híbrido particular para mesma intensidade de campo. Uma boa maneira de mensurar o efeito VSS é tomando medidas angulares de magneto-transporte dos filmes controle SC puro e híbridos SC/FM, ou seja, medidas de curvas $R(T, B, \theta)$. Em seguida, tomar os comportamentos angulares de $\Delta T_c(T, \theta)$ e pegar a diferença entre os máximos dos $\Delta T_c(T, \theta)$ do filme puro e do híbrido.

Na Figura 4.25 (a) está esquematizado as variáveis usadas na tomada das curvas angulares de magnetorresistência $R(T, B, \theta)$, que se encontram no Apêndice D. As curvas de $\Delta T_c(T, \theta)$ para os diferentes filmes híbridos Nb20/Cu/FM (FM = Co ou Py) e VSS20 são mostradas na Fig. 4.25 (b-d) para

três valores de campos magnéticos B : 0,25 T (cor preta), 0,5 T (cor vermelha) e 1,0 T (cor azul) – curvas plotadas em ordem diferentes. Mais especificamente, em (b) estão os dados de $\Delta T_c(T, \theta)$ para o filme híbrido controle Nb20/Cu5/Co40, em (c) para o filme híbrido controle Nb20/Cu5/Py2 e em (d) para a heteroestrutura do tipo VSS20 (os símbolos preenchidos correspondem aos dados dos filmes híbridos e VSS). Adicionalmente, os dados do filme controle SC de Nb20 também são plotados para comparação em cada gráfico (símbolos não preenchidos) da Fig. 4.25 (b, c e d).

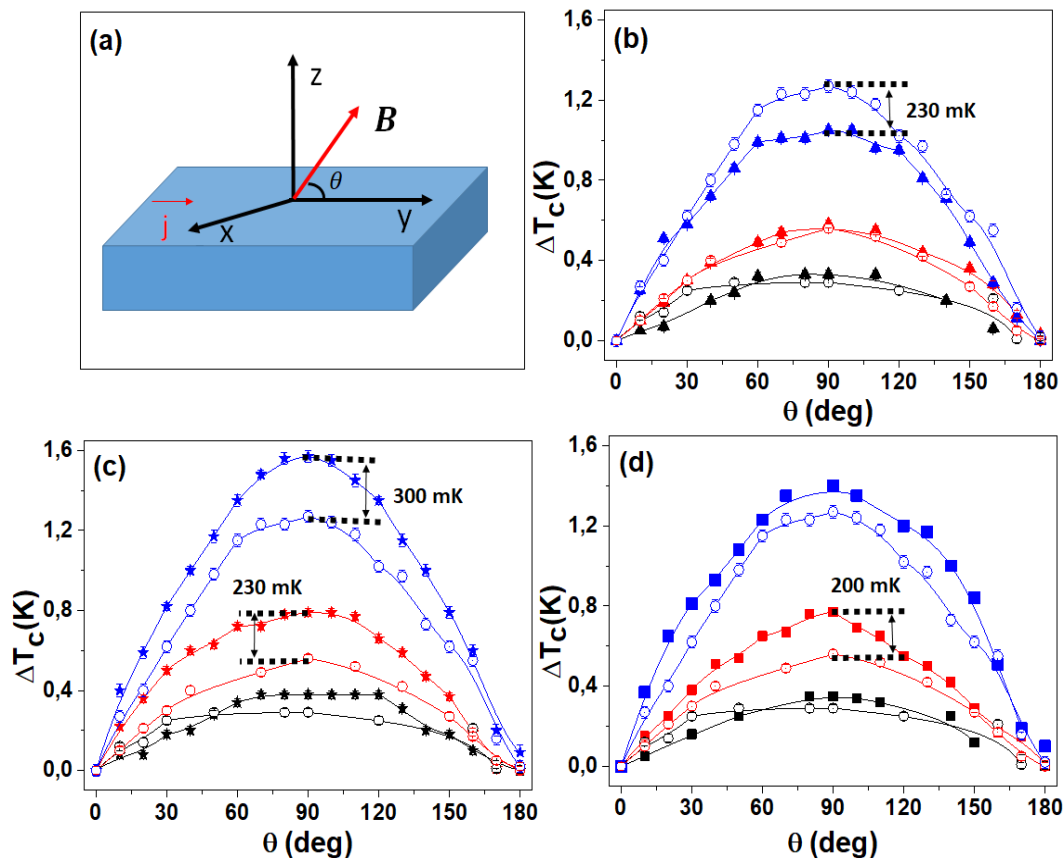


Figura 4.25: (a) Esquema da configuração experimental indicando o ângulo (θ) entre o plano do filme e a direção do campo aplicado. A corrente elétrica no plano (j) também é mostrada (seta vermelha). Os parâmetros de ΔT_c determinados a partir das curvas $R(T, B, \theta)$ são mostrados para as amostras de (b) Nb20/Cu5/Co40 (triângulos completos), (c) Nb20/Cu5/Py2 (estrelas completas) e (d) heteroestrutura híbrida VSS20 – Nb20/Cu5/Py2/Cu5/Co40 (quadrados completos). Os dados de Nb20 (círculos abertos) também são adicionados em cada gráfico para comparação. As cores estão associadas a campos diferentes: preto (0,25 T), vermelho (0,5 T) e azul (1,0 T).

Levando em consideração que o foco principal do presente trabalho diz respeito aos efeitos da configuração de campo B_{\perp} sobre a variação de T_c nos filmes finos controles híbridos SC/FM e nas VSS, será analisado o comportamento do parâmetro $\Delta T_c(T, \theta)$, que é definido como: $\Delta T_c(B, \theta) = T_c(B, \theta = 0) - T_c(B, \theta)$, onde o $T_c(B, \theta = 0)$ representa a temperatura crítica no sistema SC quando o campo magnético B e a corrente elétrica (i) estão na mesma direção, enquanto o termo $T_c(B, \theta)$ é a temperatura crítica para o campo inclinado, ou melhor, girado de um ângulo em relação ao plano da amostra, como mostrado esquematicamente na Fig. 4.25 (a). Para $\theta = \frac{\pi}{2}$, o parâmetro

$\Delta T_c(B, \theta = \frac{\pi}{2})$, que corresponde exatamente à diferença entre as temperaturas críticas T_c (determinada para o mesmo valor de campo magnético) determinadas experimentalmente nas configurações de campos B_{\parallel} e B_{\perp} . Como já estabelecido anteriormente, é possível assumir a seguinte proporcionalidade: $\Delta T_c(B, \theta) \approx B_{ef} = B + B_{FM}$, em que B_{FM} é devido ao vetor campo magnético disperso da camada FM. Assim, em princípio, o parâmetro $\Delta T_c(B, \theta)$ deve sempre: (i) ser um número positivo; (ii) aumentar à medida que a magnitude do campo é amplificada e (iii) atingir um valor máximo para $\theta = \frac{\pi}{2}$ [$\Delta T_c(B, \theta = \frac{\pi}{2})$]. Em outras palavras, com relação à dependência angular de $\Delta T_c(B, \theta)$, quando o ângulo θ é aumentado, o componente perpendicular do campo diminui, em maior extensão, o valor de T_c comparado com o valor obtido na configuração do campo B_{\parallel} [$T_c(\theta = 0^\circ)$]. Assim, quando o ângulo θ aumenta, o $\Delta T_c(B, \theta)$ também aumenta até atingir um máximo para $\theta = \frac{\pi}{2}$, depois cai novamente produzindo, em geral, uma curva simétrica para $\Delta T_c(T, \theta)$ com máximo em $\theta = \frac{\pi}{2}$. Em outras palavras, $\Delta T_c(B, \theta) = T_c(B, \theta = 0) - T_c(B, \theta)$ deve ser positivo, deve aumentar com θ e atingir seu valor máximo para $\theta = \frac{\pi}{2}$, quando o campo aplicado é completamente perpendicular ao plano da amostra (isto é, supressão máxima de T_c). Finalmente, o $\Delta T_c(B, \theta)$ deve diminuir novamente para $\theta > \frac{\pi}{2}$, ou seja, no intervalo de $\frac{\pi}{2} < \theta < \pi$.

Um ponto adicional a ser notado é quando o campo é inclinado para fora a configuração B_{\perp} , a estrutura magnética da camada FM também pode ser substancialmente modificada, e isso pode ter consequências adicionais na forma como campo magnético disperso da camada FM que afeta as propriedades supercondutoras (SC) adjacentes, particularmente, se é assumido que os domínios magnéticos perpendiculares mudam progressivamente com o aumento da magnitude do campo B.

Após essa discussão qualitativa sobre o parâmetro $\Delta T_c(B, \theta)$, é necessário retornar a discussão dos resultados experimentais mostrados na Fig. 4.25 (b, c e d). Primeiro, como pode ser visto, todas as curvas de $\Delta T_c(B, \theta)$ mostram valores positivos e suas magnitudes aumentam à medida que o valor do ângulo aumenta, atingindo o pico em aproximadamente $\theta = \frac{\pi}{2}$ e diminuindo novamente

no segundo quadrante ($\frac{\pi}{2} < \theta < \pi$), conforme discutido qualitativamente no parágrafo acima. Melhor dizendo, todas as curvas $\Delta T_c(B, \theta)$ sugerem comportamentos parabólicos, em geral, relativamente simétricos e com máximos em $\theta = \frac{\pi}{2}$

Surge aqui um ponto interessante quando se analisa os dados para Nb20/Cu5/Co40 e Nb20/Cu5/Py2 (não totalmente separados), mas em comparação com os dados semelhantes para a amostra de Nb20. Em particular, para o filme controle híbrido Nb20/Cu5/Co40 [Fig. 4.25 (b)] não há nenhuma diferença significativa entre às curvas $\Delta T_c(B, \theta)$ obtidas para os campos aplicados 0,25 T (símbolos pretos) e 0,5 T (símbolos vermelhos) quando comparado com os respectivos dados de $\Delta T_c(B, \theta)$ para o filme controle SC Nb20, mesmo considerando o campo magnético disperso no sistema híbrido Nb20/Cu5/Co40; campo magnético este causado pelas duas frações de spins da camada de Co previamente discutidas [spin- \perp e spin- \parallel] para estes valores de campo. Em outras palavras, os valores de $\Delta T_c(B, \theta)$ são praticamente os mesmos em ambos os filmes [Nb20 e Nb20/Cu5/Co40], para todo o intervalo de ângulos usado em nosso experimento e para cada valor de campo aplicado B (0,25 e 0,5 T). Para esses valores de campo [0,25 e 0,5 T], conforme sugere curva M(B) [Fig. 4.11(a)], a magnetização da camada de Co advém principalmente da fração de spin- \perp e, portanto, as estruturas de domínios magnéticos da camada de Co não estão afetando significativamente as propriedades SC da sua camada Nb20. Dessa forma, a mudança nos valores de $\Delta T_c(B, \theta)$ tanto no filme controle híbrido Nb20/Cu5/Co40 quanto no sistema controle SC Nb20 é causada basicamente pela contribuição do campo aplicado na configuração B_{\perp} [não há alteração relativa de $\Delta T_c(B, \theta)$ em relação à amostra de Nb20 devido à modificação dos domínios magnéticos do Co para esses dois valores de campo].

Por outro lado, para $B = 1,0$ T e para um intervalo específico de ângulos em torno de $\theta = \frac{\pi}{2}$, os valores de $\Delta T_c(B, \theta)$ para o filme controle híbrido Nb20/Cu5/Co40 são inferiores aos valores $\Delta T_c(B, \theta)$ correspondentes para o filme controle SC Nb20 na mesma posição angular. De fato, uma diferença de -230 mK no $\Delta T_c(B, \theta)$ [medida do efeito de VSS] é encontrado entre as amostras de Nb20 e Nb20/Cu/Co, conforme mostrado na Fig. 4.25 (b).

Como indicado pelos resultados mostrados na Fig. 4.11 (a), os valores de magnetização do Co são gradualmente aumentados à medida que o campo B aumenta de 0,5 para 1,0 T (configuração de campo B_{\perp}), logo seria também esperado um aumento no valor do B_{ef} experimentado pela camada SC de Nb, provocando uma redução maior no valor de T_c quando comparado com a amostra pura de Nb20, ou seja, um valor maior de $\Delta T_c(B, \theta) = T_c(B, \theta = 0) - T_c(B, \theta)$ no caso de filmes híbridos deveria ser observado. No entanto, foi medido um comportamento oposto para o $\Delta T_c(B, \theta)$ registrado em 1,0 T [$\Delta T_c(B, \theta) < 0$]. Aqui deve mais uma vez ressaltar que os resultados de $\Delta T_c(B, \theta)$ da amostra de Nb20/Cu5/Co40 foram repetidos em amostras replicadas. De certa forma, essa observação experimental pode (ou deve) fornecer alguma indicação sobre o comportamento da interação entre supercondutividade e ferromagnetismo no sistema híbrido, assim trazer informação, por exemplo, do papel das estruturas de domínios das camadas FM sobre a SC da camada de Nb.

Para entender essa questão, é necessário considerar que (i) esses resultados de magnetização para o filme híbrido Nb/Cu/Co [Fig. 4.11 (a)] mostraram a presença de duas configurações de spin: uma fração dominante com configuração de spin no plano (spin-||) e uma contribuição adicional de spin fora do plano (spin- \perp) e (ii) resultados da literatura indicam que os filmes finos de Co crescidos na camada de Cu possuem domínios magnéticos irregulares [119] e, domínios magnéticos perpendiculares (regiões de paredes de domínios) que podem ser modificadas pelo campo aplicado na configuração B_{\perp} [90]. As ideias (i) e (ii) acima estão de acordo com um grande sinal de remanência medido para a configuração de B_{\perp} e também com o fato de que as distribuições de domínios magnéticos (spins- \perp e ||) da camada de Co são significativamente modificados pelo campo magnético aplicado. Além disso, a fração de spin- \perp é crescida progressivamente com o aumento da magnitude do campo B aplicado. Nesta condição, haverá um aumento da densidade de domínios perpendiculares (domínios magnéticos perpendiculares de Co têm dimensões menores do que os domínios planares), em condição de fechamento (efeito magnetostático), antes da ocorrência de saturação total da magnetização da camada de Co [90]. Com base nessas ideias, é possível supor que as estruturas de domínios magnéticos da camada FM de Co sejam a origem física para o comportamento

de $\Delta T_C(B, \theta)$ discutido acima para $B = 1,0$ T, mesmo que no filme controle híbrido Nb/Cu/Co as camadas SC de Nb e FM de Co estão fisicamente separadas. Portanto, há, pelo menos, duas fontes principais de interação entre a camada SC e FM: (i) efeito de proximidade, onde os pares de Cooper do SC de Nb difundem na camada FM de Co reduzindo o valor de T_C (depende da estrutura de domínio magnético dentro da camada) e (ii) efetivamente o campo disperso da camada de FM de Co. Outros mecanismos físicos não podem ser desconsiderados, como por exemplo, o campo magnético de troca oriundo da polarização dos elétrons da camada metálica de Cu (o efeito de polarização de spin via elétrons de condução do espaçador de Cu), mas que não foi estudado nesta tese, exceto quando foi mostrado que há uma redução de T_C com d_{Cu} [T_C decresce com aumento de d_{Cu} – Fig., 4.13 (b)].

Com relação a contribuição proveniente do campo magnético disperso (B_{FM}) é importante ressaltar os esforços recentes para manipular as propriedades SC em heteroestruturas híbridas SC/FM, controlando as estruturas do domínio magnético (spins \perp e \parallel) da camada FM [21,30,79]. Os estudos de manipulação dos domínios spin- \perp sugerem que há regiões na camada SC onde o campo B_{ef} é aumentado, enquanto há outras regiões onde o campo B_{ef} é diminuído, amplificando assim as propriedades SC da camada em heteroestruturas SC/FM com spins- \perp [30] na configuração de campo aplicado B_{\perp} . Portanto, considerando que a relação de $\Delta T_C(B, \theta) \approx B_{ef}$ e os resultados experimentais para o filme controle híbrido Nb20/Cu5/Co40 para o campo $B = 1,0$ T [Figura 4.25 (b)], é possível inferir que o campo B_{ef} atuando na camada SC de Nb do filme controle híbrido Nb20/Cu5/Co40 está diminuído quando comparado com efetivo que atua na camada SC Nb pura para um menor valor de B que define $\Delta T_C(B, \theta)$. Consequentemente, para explicar o comportamento de $\Delta T_C(B, \theta)$ observado para $B = 1,0$ T, é necessário assumir que os domínios de spin- \perp crescem gradualmente na camada FM de Co à medida que o campo B aumenta, ou seja, com isso aumenta a densidade de domínios magnéticos com spin- \perp na camada do Co (grandes densidades de regiões da parede de domínio), que, em essência, gera um campo disperso efetivo não homogêneo na superfície da camada de Nb. Sob essas condições, devem existir regiões no filme de Nb no filme híbrido Nb20/Cu5/Co40 em que o campo magnético

disperso dos domínios magnéticos pode compensar (reduzir) parcialmente o campo magnético aplicado B , favorecendo a nucleação da supercondutividade (preferencialmente nas regiões da parede de domínio) ou possibilitando o fluxo de pares de Cooper (ocasionando maior valor de T_c na amostra de Nb/Co). Essa descrição do efeito é semelhante ao observado por Lange e colaboradores [30], quando nanoengenharia de pontos magnéticos foram preparadas tal que havia regiões onde a supercondutividade era mantida no sistema híbrido mesmo na presença de campo aplicado B (foi demonstrado que existe uma nucleação da supercondutividade nas regiões espaciais na camada SC entre domínios ferromagnéticos perpendiculares). Em essência, o menor valor de T_c para direções de campo inclinado no sistema controle híbrido Nb20/Cu5/Co40 (quando comparado com o valor de T_c determinado para Nb20) é causado principalmente pela presença de grande densidade de domínios magnéticos com spins- \perp na camada FM (Co), que resulta em regiões de campos dispersos magnéticos não homogêneos na interface SC/FM, tal que o campo B_{ef} no filme híbrido Nb20/cu5/Co40 é menor que o campo sentido na amostra de Nb20 pura.

Por outro lado, o comportamento do valor de $\Delta T_c(B, \theta)$ [Fig. 4.25 (c)] para o filme híbrido Nb20/Cu5/Py2 (comparado com o do filme controle SC Nb20) tem o mesmo comportamento esperado para camadas FM em sistemas híbridos comuns, ou seja, $\Delta T_c(B, \theta) \propto B_{ef}$, que por sua vez, aumenta com aumento da intensidade do campo B em todas as regiões da amostra. De fato, os valores de $\Delta T_c(B, \theta)$ para o filme controle híbrido Nb20/Cu5/Py2 são (i) superiores aos valores medidos para a amostra pura de Nb20, como previsto por $\Delta T_c(B, \theta) \approx B_{ef} = B + B_{FM}$, e (ii) são independente da magnitude do campo. O item (ii) não foi observado para a amostra de Nb20/Cu5/Co40, já que os campos de 0,25 e 0,5 T não apresentaram mudanças nos valores de $\Delta T_c(B, \theta)$ com relação aos do filmes de Nb20 puro. Como consequência, diferenças maiores nos valores de $\Delta T_c\left(B, \theta = \frac{\pi}{2}\right)$ são encontrados nos filmes híbridos Nb20/Cu5/Py2, tal que os valores de efeito VSS são calculados como sendo: +230 mK a campo de 0,5 T e +300 mK a $B = 1,0$ T [valores definidos entre os máximos das curvas de $\Delta T_c(B, \theta)$ amostras de Nb20 e Nb20/Cu5/Py2, conforme sugere Fig. 4.25 (c)].

Considerando o sistema controle híbrido Nb20/Cu5/Py2 cabe discutir primeiramente as propriedades magnéticas da camada de Py. Ela, por sua vez,

mostrou um caráter de magneto macio (fraca anisotropia magnetocristalina, onde os spins mais facilmente se orientam na direção do campo aplicado B), mesmo para a configuração de campo B_{\perp} [Fig. 4.11 (b) – campos de baixa magnitude podem saturar facilmente sua magnetização]. O caráter observado na Fig. 4.11(b) da camada de Py está associado a formação de domínios magnéticos tipo “tarjas” (ou “faixas”), causadas pelos grãos colunares produzidos pelo processo de deposição [89]. Os filmes de Py costumam formar domínios magnéticos com “tarjas” grandes [89], portanto, o campo magnético disperso é mais homogêneo na camada de Py (no estado saturado) do que na camada de Co. Este fato reforça, em todo material híbrido, o campo aplicado devido à sua baixa densidade das regiões da parede de domínio, ou seja, em todas as regiões do filme de Nb, o campo B_{ef} é sempre crescente, levando ao comportamento esperado para os valores ΔT_C [$\Delta T_C(B, \theta) \approx B_{ef}$]. Assim, os valores de $\Delta T_C(B, \theta)$ para o filme controle híbrido Nb20/Cu5/Py2 são maiores em relação aos obtidos para o filme controle SC de Nb20, seguindo completamente o comportamento esperado para parâmetro $\Delta T_C(B, \theta)$.

A partir dos resultados de $\Delta T_C(B, \theta)$ para a heteroestrutura híbrida VSS20 [Fig. 4.20 (d)], é possível notar que $\Delta T_C(B, \theta)$ também acompanha o comportamento esperado de $\Delta T_C(B, \theta) \approx B_{ef}$, ou seja, ΔT_C aumenta positivamente mais rápido do que os valores de $\Delta T_C(B, \theta)$ no filme controle SC de Nb20 (aumento com o valor do ângulo e tem seu em $\theta = \frac{\pi}{2}$). Mesmo sendo o comportamento de $\Delta T_C(B, \theta)$ aparentemente dominado pela contribuição da camada FM de Py, não é possível desprezar a contribuição da camada FM de Co, conforme demonstrado acima quando o valor do campo magnético disperso foi calculado, onde foi demonstrado que ele aumenta em relação ao do sistema controle híbrido Nb20/Cu5/Py2.

Cabe finalmente mencionar que: (i) no sistema híbrido SVV20 o campo B_{ef} (experimentado pela camada SC de Nb) sempre aumenta à medida que o campo B aplicado cresce [$\Delta T_C(B, \theta) \approx B_{ef}$], (ii) a camada FM de Py [ferromagneto mole – Fig. 4.12(b)] está quase saturado, mas a camada de Co ainda está longe da saturação [Fig. 4.12(a)] até 1,0 T, (iii) a camada de Co está mais afastada da camada SC de Nb, assim o efeito líquido das camadas FM individuais de Py e Co é de adição do valor final de campo B_{ef} , como o efeito observado para o filme

controle híbrido Nb20/Cu5/Py2 [as heterogeneidades derivadas dos domínios magnéticos fora do plano da camada do Co (aumentada pela fração de spin- \perp de Co) ficam mascaradas e são brutalmente reduzidas]. Portanto, o valor do efeito VSS medido de + 200 mK para a VSS20 [medido para $\Delta T_c \left(B, \theta = \frac{\pi}{2} \right)$] para o campo de 0,5 T relativo ao filme controle SC de Nb20 sugere que, mesmo considerando os resultados do filme controle híbrido Nb20/Cu5/Py2, a VSS20 mostrou grande valor de $\Delta T_c \left(B, \theta = \frac{\pi}{2} \right)$ para campos de 0,5 e 1,0 T e portanto, o sistema Cu5/Co40 ainda tem uma significativa influência no efeito da válvula de spin supercondutora VSS20. Então, a supressão do T_c no sistema híbrido do tipo VSS20 (quando comparado com a mesmo efeito no sistema puro de Nb20) aumenta gradualmente para 0,5 T e depois reduz novamente para campos altos ($B = 1,0$ T), ressaltando a contribuição do campo magnético disperso da camada de Co. O valor de + 200 mK em $B = 0,5$ T para ΔT_c [Fig. 4.20 (d)] é consequência do efeito conjugado de campos dispersos das camadas ferromagnéticas de Py e Co na camada SC de Nb.

Considerando que o maior valor de $\Delta T_c(B, \theta)$ (efeito VSS) foi observado para o campo de 0,5 T, foi estudado um novo conjunto de filmes controles híbridos e VSS, agora com Nb de 100 nm de espessura (intuito de estudar a influência da espessura da camada supercondutora). Os resultados de $\Delta T_c(B, \theta)$ são apresentados na Figura 4.27 para apenas o valor de 0,5 T. Essa figura mostra o comportamento do parâmetro $\Delta T_c(B, \theta)$ para Nb100/Cu5/Co40 [Fig. 4.26 (a)], Nb100/Cu5/Py2 [Fig. 4.27 (b)] e para a mostra híbrida tipo VSS100 [Fig. 4.26 (c)]. Os resultados de $\Delta T_c(B, \theta)$ para o filme controle SC Nb100 também são exibidos em cada gráfico para comparação (símbolos abertos). Primeiro, os valores de $\Delta T_c(B, \theta)$ para as amostras com $d_{Nb} = 100$ nm são menores que os encontrados para os filmes com $d_{Nb} = 20$ nm, previamente discutidos. Enquanto o filme controle híbrido Nb100/Cu5/Co40 [Fig. 4.26 (a)] apresenta uma redução nos valores de $\Delta T_c(B, \theta)$ quando comparado com o filme controle SC Nb100 (similar ao comportamento dos filmes controles SC Nb20 e Nb20/Cu5/Co40), para o filme controle Nb100/Cu5/Py2, os valores $\Delta T_c(B, \theta)$ [Fig. 4.26(b)] também sugerem um crescimento quando comparados com os resultados de $\Delta T_c(B, \theta)$ do filme controle SC de Nb100, similar aos resultados observados para os filmes controle mais fino de Py [Nb20/Cu5/Py2]. Então, os

resultados de $\Delta T_C(B, \theta)$ indicam que o comportamento redução (aumento) nos valores de $\Delta T_C(B, \theta)$ é uma característica das contribuições distintas das camadas Py (Co).

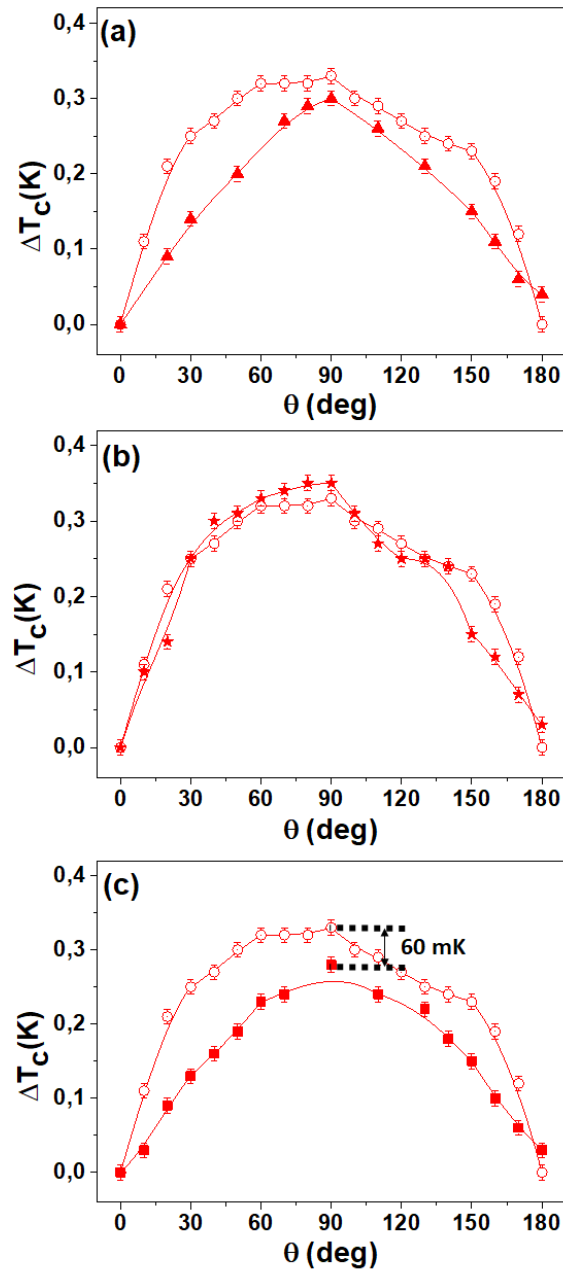


Figura 4.26: Comportamentos de $\Delta T_C(B = 0,5 T, \theta)$ determinado a partir das curvas de $R(T, B = 0,5 T, \theta)$ para (a) Nb100/Cu5/Co40 (triângulos completos), (b) Nb100/Cu5/Py2 (estrelas completas) e (c) heteroestrutura híbrida tipo VSS100 - Nb100/Cu5/Py2/Cu5/Co40 (quadrados completos). Os dados de Nb100 (símbolos abertos) foram também adicionados em cada gráfico para comparação.

Por outro lado, para o sistema híbrido do tipo VSS100, o comportamento do parâmetro $\Delta T_c(B, \theta)$ [Fig. 4.26 (c)] é diferente ao encontrado no sistema híbrido VSS20, ou seja, os valores de $\Delta T_c(B, \theta)$ reduzem em relação aos valores encontrados para o filme controle SC Nb100. Conseqüentemente, usando os resultados acima apresentados e discutidos, é possível inferir que a camada FM de Co aparentemente tem um papel relevante sobre as propriedades SC da camada Nb com $d_{Nb} = 100$ nm. Finalmente, comparando os resultados de $\Delta T_c(B, \theta)$ dos sistemas híbridos de Nb20/Cu5/Co40 e Nb100/Cu5/Co40, é calculada uma diferença de 0,3 K (300 mK) nos valores de $\Delta T_c\left(B, \theta = \frac{\pi}{2}\right)$.

Essa observação experimental sugere que o valor de $\Delta T_c(B, \theta)$ é drasticamente reduzido em filmes de Nb mais espessos quando em heteroestruturas híbridas e contendo uma camada FM de Co (como um ímã forte). Essa redução na magnitude de $\Delta T_c\left(B, \theta = \frac{\pi}{2}\right)$, ou efeito da VSS, observada em filmes de Nb espessos (Nb100) é uma consequência do efeito anisotrópico da camada SC de Nb que diminui à medida que d_{Nb} cresce.

Nesta configuração de camadas espessas de Nb (ex: Nb100), o campo magnético disperso não homogêneo da camada FM de Co, que cai com a distância dentro da camada SC de Nb, ocasionará um gradiente de campo magnético tal que haverá parte dos átomos de Nb longe da interface magnética (Co) com campo B_{ef} reduzido e onde a supercondutividade irá se nuclear (esse comportamento é diferente do discutido acima para o filme híbrido Nb20/Cu5/Co40). O máximo efeito VSS100 foi de - 60 mK [Fig. 4.27 (c)]. Este valor, como dito acima, é inferior ao observado em sistema híbridos com camadas de Nb mais fina (VSS20), mas ainda é um maior do que aquele relatado para sistemas híbridos FM/SC/FM para qual foi medido um valor de + 41 mK quando as magnetizações no planos das camadas FM tem suas orientações relativas modificadas [82].

Para finalizar esta discussão, é possível enumerar algumas características importantes: (i) valores consideráveis de efeito VSS (200-300 mK) foram medidas em heteroestruturas híbridas SC/FM estudadas nesta tese, (ii) o campo magnético disperso das camadas FM de Co e Py tem fontes distintas, conseqüentemente atuam de maneira diferente na camada SC de Nb,

(iii) as estruturas de domínios não homogêneas da camada de Co são responsáveis para produzir regiões com campo magnético efetivo menor do que o campo aplicado, favorecendo a supercondutividade, (iv) o efeito VSS diminui à medida que a camada SC de Nb se torna mais espessa, reduzindo assim os efeitos anisotrópicos e de proximidade e (v) foi demonstrado que o campo magnético disperso tem um papel fundamental no comportamento do efeito VSS [medido $\Delta T_c \left(B, \theta = \frac{\pi}{2} \right)$] e, portanto, não somente a transição dos pares de Cooper do estado singleto para o tripleto (S-T) é a explicação dos altos valores de $\Delta T_c \left(B, \theta = \frac{\pi}{2} \right)$.

Capítulo 5

Conclusão

Neste trabalho de doutorado, foram preparadas no equipamento *Magnetron Sputtering* Orion-8 filmes finos puros supercondutor de Nb e ferromagnéticos de Py e Co e também heteroestruturas híbridas Nb/Cu/FM (FM= Co ou Py) e válvulas de spin supercondutoras Nb/Cu/Co/Cu/Py (VSS) afim de testar o modelo fenomenológico anisotrópico de Ginzburg-Landau (GL) e quantificar o campo magnético disperso da camada FM que atua na camada SC de Nb. Para isso, estas amostras foram sistematicamente caracterizadas com medidas de difração de raios X, magnéticas e de magneto-transporte, sendo as medidas de magnetorresistência as mais utilizadas no trabalho. Do ponto de vista de nossa hipótese (usar o modelo de GL para determinar o valor do campo magnético disperso), as Equações (4.4) e (4.5) respectivamente para $T_{C\perp}(B)$ e $T_{C\parallel}(B)$ (extraídas do modelo anisotrópico de GL) mostraram limites específicos para a espessura da camada SC de Nb onde o efeito anisotrópico é amplificado. Então, com a definição do parâmetro $\Delta T_C(B) [=T_{C\parallel}(B) - T_{C\perp}(B)]$ foi primeiro observado que no limite de SC anisotrópico (caráter 2D) há uma relação de proporcionalidade com o campo magnético efetivo (B_{ef}) atuando na camada SC de Nb, conseqüentemente a hipótese pode ser testada e o valor do campo magnético disperso pode ser quantificado em cada uma das estruturas híbridas controle e VSS.

Os filmes puros Nb ($d_{Nb} = 20$ e 100 nm) foram crescidos diretamente sobre o Si(100) naturalmente oxidado com o substrato girando e em uma temperatura $T_s = 100$ °C. Nesta condição, esses filmes de Nb apresentaram caráter granular, com estrutura cristalina governada pela fase BCC e com os tamanhos de grão que aumentaram à medida que a espessura d_{Nb} aumentou, reproduzindo resultados previamente observado por Tales [36]. Ambos os valores de parâmetro de rede dos filmes Nb20 e Nb100 são maiores do que o valor de *bulk* Nb, indicando que o filmes de Nb crescidos sobre Si estão sempre tensionados, de maneira que no filme de Nb20 a tensão é maior. O caráter granular e as

tensões internas da camada de Nb (nos grãos) provocam uma redução adicional da temperatura crítica supercondutora T_c , reproduzindo também resultados previamente estabelecidos. Este fato garante que nas condições experimentais descritas nesta tese, há uma garantia na reprodução das propriedades estruturas, morfológica (distribuição de grãos cristalinos) e, conseqüentemente nas propriedades supercondutoras. Mesmo levando em consideração que há uma distribuição nos valores de T_c , medidos indiretamente com curvas $R(T)$, a análise dos grãos cristalinos maiores (maiores T_c) favoreceu o entendimento de vários problemas, como por exemplo, a influencia do campo magnético disperso das camadas FM sobre a camada SC de Nb. Das réplicas de amostras preparadas neste trabalho, foi também demonstrado experimentalmente que as propriedades supercondutoras da camada de Nb são reproduzíveis nos filmes.

Com relação as propriedades magnéticas das camadas FM de Py e Co (importantes para o entendimento do campo disperso dessas camadas), foi demonstrado que:

- A camada ferromagnética de Co sempre apresentou duas configurações de domínios magnéticos: spins- \perp e spins- \parallel . Essas frações foram modificadas através da aplicação de campo, principalmente na configuração perpendicular (B_{\perp}). Além disso, a fração de spins- \perp da camada de Co é fortemente dependente da tensão interna na camada de Nb usada para crescimento primeiro da camada espaçadora de Cu e depois de Co. Então, foi observado que à medida que d_{Nb} cresce menor é a fração de spins- \perp . A existências das duas frações é fundamental para se produzir um campo magnético disperso com propriedades específicas, que garantem a nucleação do estado SC mesmo em presença de altos campos magnéticos aplicados (relativo ao valor de T_c tomado para o filme equivalente puro no mesmo campo aplicado).
- A camada ferromagnética de Py, por ser um magneto mole, ter um espessura baixa (2 nm = filme ultra fino) e ser crescida pela geométrica de incidência rasante do feixe de vapor e com o substrato parado (grãos cristalinos colunares e inclinados com relação ao plano), tem domínios magnéticos maiores do que na camada de Co e com a magnetização ligeiramente fora do plano (acompanha a anisotropia de forma dos grãos).

Todavia, para valores de campo B_{\perp} inferiores aos da camada de Co, ocorre a saturação da magnetização (1,0 T para o Py e 2,0 para o Co), com isto sua distribuição de magnetização é mais homogênea e influencia diferentemente as propriedades supercondutoras do Nb.

Com respeito a influência da espessura do espaçador de Cu (d_{Cu}) sobre a T_c da camada SC de Nb, foi experimentalmente verificado [com medidas de $R(T, B=0\text{ T})$] para o sistema híbrido tipo válvula de spin VSS20] que à medida que o valor de d_{Cu} diminui no sistema Nb/Cu(d_{Nb})/Py/ Cu(d_{Nb})/Co, há uma redução linear e significativa nos valores de T_c dos filmes finos de Nb com $d_{Nb} = 20\text{ nm}$. Essa é uma comprovação conjugada de vários fenômenos intercorrelacionados que são: (i) o campo disperso da camada FM adjacente a camada SC, (ii) o efeito da polarização dos elétrons de condução da própria camada de Cu pela camada FM e (iii) o efeito de proximidade, que favorece maior densidade de pares de Cooper tunelando para a camada FM. Nesta tese os itens (i) e (ii) foram assumidos indistinguíveis e foram denominados como campo magnético disperso, sem perda de generalidade.

Como dito acima, o campo magnético disperso não tem sido calculado e nem medido experimentalmente de maneira frequente (antes desta tese não se conhecia o valor deste campo em sistemas híbridos). Então, uma das principais contribuições, além do desenvolvimento de nanomateriais com diferentes estruturas de spins, é o uso do parâmetro definido ΔT_c para quantificar o campo magnético disperso das diferentes camadas FM em sistemas híbridos SC/FM. Em outras palavras, foi experimentalmente verificado o comportamento linear com o campo efetivo proposto para o parâmetro $\Delta T_c(B)$ oriundo do modelo fenomenológico de GL para todas as heteroestruturas híbridas produzidas com $d_{Nb} = 20\text{ nm}$. Em particular, foi demonstrado que:

- O valor do campo magnético disperso (*stray field*) da camada FM nos sistemas híbridos Nb/Cu/FM (FM= Co ou Py) tem intensidade e sinais diferentes, ou seja, $B_{Co}(0) = -(8,5 \pm 0,1)\text{ mT}$ e $B_{Py}(0) = +(31,0 \pm 0,3)\text{ mT}$. O principal motivo da diferença nesses valores e sinais foi explicada assumindo o fato de que a camada FM de Py apresentou uma distribuição mais homogênea na magnetização em B_{\perp} (em campos

- baixos) do que a da camada de Co que, por sua vez, apresentou uma magnetização não homogênea oriunda das duas frações de spins (\perp e \parallel);
- Pelo valor do campo disperso (*stray field*) inferido para a VSS20 [$B_{Py/Co}(0) = +(38,0 \pm 0,4) \text{ mT}$], foi concluído que a camada de Py tem uma forte influência neste valor de campo, pois está mais próxima da camada SC de Nb e devido sua distribuição de domínios magnéticos largos sempre tem um efeito aditivo ao campo aplicado, enquanto que na camada de Co os domínios perpendiculares são menores e tem regiões onde se soma ao campo, mas tem também regiões onde reduzem o valor do campo aplicado;
 - Foi também demonstrado que a taxa de mudanças nas estruturas de spins provocadas pelo campo aplicado nos sistemas Nb/Cu/FM (FM= Co ou Py) segue a seguinte condição $\beta_{Co} [(- 0,22 \pm 0,02)] < [(- 0,17 \pm 0,02)] \beta_{Py}$, fato que está intimamente relacionado com as diferentes estruturas de domínios magnéticos das camadas de Py e Co.

Do estudo do efeito VSS [definido como a diferença entre os máximos dos parâmetros ΔT_c do sistema híbrido relativo ao sistema puro, ou seja, $\Delta T_c(\text{Nb/FM}) - \Delta T_c(\text{Nb})$] foi possível mostrar que (i) as diferentes estruturas de domínios magnéticos das camadas de Co e Py geram campos magnéticos dispersos distintos que, por sua vez, geram valores altos de efeito VSS no intervalo entre 60 e 300 mK, (ii) esse efeito é dependente também do efeito anisotrópico da camada SC, ou seja, à medida que o valor de d_{Nb} aumenta, o efeito VSS diminui ou é mascarado pela redução do efeito de anisotropia da camada SC, (iii) o sinal do campo magnético disperso das camadas FM de Co (negativo) e Py (positivo) provoca diferentes valores do efeito VSS, sendo também negativo para o caso do sistema híbrido com Co em 1,0 T, mas sempre com valores positivos para o sistema híbrido com Py, (iv) as estruturas de domínios não homogêneas da camada de Co são responsáveis para produzir regiões com campo magnético efetivo menor do que o campo aplicado, favorecendo a supercondutividade.

Finalizando, foi possível concluir que o campo magnético disperso tem um papel fundamental no comportamento do efeito VSS [medido $\Delta T_c \left(B, \theta = \frac{\pi}{2} \right)$] e, portanto, não somente a transição dos pares de Cooper do estado singleto para

o tripleto (S-T) é a explicação dos altos valores de $\Delta T_c \left(B, \theta = \frac{\pi}{2} \right)$ encontrados recentemente em sistemas híbridos SC/FM [21,35]. Com esta tese e os artigos publicados, fica demonstrado que há realmente a necessidade de se levar em conta a contribuição do campo magnético disperso da camada FM em sistemas híbridos SC/FM. A metodologia aqui desenvolvida traz uma luz para que esta questão seja então sistematicamente usada na interpretação e do entendimento do efeito VSS. Em outras palavras, esta tese forneceu um modelo físico prático que contribui para se quantificar os campos magnéticos efetivos na camada supercondutora de heteroestruturas híbridas SC/FM, conseqüentemente contribui para um melhor entendimento do funcionamento dos dispositivos VSS.

Uma das questões em aberto, entre as várias, é exatamente tentar separar os efeitos do campo magnético de troca, originado pela polarização dos elétrons de condução do espaçador, sobre a camada SC de Nb. Para isso, há necessidade de se variar a espessura do espaçador de monocamada e mudar o mesmo, colocando por exemplo, Ru que possui maior densidade de elétrons de condução. Em particular, se usar ou substrato de safira ou alvo de nióbio nitretado (NbN) valores maiores de T_c podem ser obtidos e camadas mais finas SC podem ser preparadas para amplificar também o efeito de proximidade. São muitas ações que podem ser feitas nos sistemas híbridos, pois é um assunto muito novo e quente.

Referências

- [1] A. P. Guimarães, *Nanoscience and Technology; Principles of Nanomagnetis*, 2a ed., Springer, p. 1 (2009).
- [2] J. Lee, H. Kim, J. Chang, S. H. Han, H. C. Koo, S. Sayed, S. Hong, S. Datta. *Scientific Reports* 8, 3397 (2018).
- [3] A.J. Annunziata, D.F. Santavicca, J.D. Chudow, L. Frunzio, M.J. Rooks, A. Frydman, D.E. Prober. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* 19, 327 (2009).
- [4] N. Alcheikh, P. Xavier, J.M. Duchamp, K.F. Schuster, C. Malhaire, B. Remaki, C. Boucher, X. Mescot. *Microsyst. Technol.* 21, 301 (2015).
- [5] X. Liu, X. Liu, H. Wang, L. Chen, Z. Wang. *Phys. C* 515, 36 (2015).
- [6] C. C, Koch. *Nanostructured materials: processing, properties, and applications*. 2 ed., William Andrew, (2006).
- [7] E. Ongun, M. Kuru , M. Serhatlioglu , M. Hançer, A.E. Ozmetin. *Vacuum* 144, 116 (2017).
- [8] R. K. Singh, O. W. Holland, J. Narayan. *Journal of Applied Physics* 68, 233 (1990).
- [9] T. C. Freitas, J. L. Gonzalez, V. P. Nascimento, A. Y. Takeuchi, E. C. Passamni. *Current Applied Ph.* 18, 123 (2017).
- [10] D.G. Naugle, R.E. Glover III, W. Moormann, *Physica* 55, 250 (1971).
- [11] J.H. Quateman, *PRB* 34, 1948 (1986).
- [12] M.S.M. Minhaj, S. Meepagala, J.T. Chen, L.E. Wenger, *PRB* 49, 15235 (1994).
- [13] S. Bose, P. Raychaudhuri, R. Banerjee, P. Vasa, P. Ayyub, *PRL* 95, 147003 (2005).
- [14] L. Fábrega, A. Camón, I. Fernández-Martínez, J. Sesé, M. Parra-Borderías, O. Gil, R. González-Arrabal, J.L. Costa-Krámer, F. Brione, *Supercond. Sci. Technol.* 24, 075014 (2011).
- [15] C.S.L. Chun, G.G. Zheng, J.L. Vicent, IvanK. Schuller, *Phys. Rev. B* 29., 4915 (1984).

- [16] A.W. Tsen, B. Hunt, Y.D. Kim, Z.J. Yuan, S. Jia, R.J. Cava, J. Hone, P. Kim, C.R. Dean, A.N. Pasupathy, *Nat. Phys.* 12, 208 (2016).
- [17] A.A. Armenio, C. Cirillo, G. Iannone, S.L. Prischepa, C. Attanasio, *PRB* 76, 024515 (2007).
- [18] A. Gupta, G. Singh, D. Kumar, H. Kishan, R.C. Budhani, *APL* 103, 182602. (2013).
- [19] A.W. Tsen, B. Hunt, Y.D. Kim, Z.J. Yuan, S. Jia, R.J. Cava, J. Hone, P. Kim, C.R. Dean, A.N. Pasupathy, *Nat. Phys.* 12, 208 (2016).
- [20] G. Grimald, A. Leo, A. Nigro, S. Pace, V. Braccini, E. Bellingeri, C. Ferdeghini. *Scientific Reports* 8, 4140 (2018).
- [21] A. Singh, S. Voltan, K. Lahabi, and J. Aarts, *Phys. Rev. X* 5, 021019 (2015).
- [22] A. I. Buzdin, *Rev. Mod. Phys.* 77, 935 (2005).
- [23] N. Banerjee, C. B. Smiet, R. G. J. Smits, A. Ozaeta, F. S. Bergeret, M. G. Blamire, and J. W. A. Robinson, *Nat. Commun.* 5, 3048 (2014).
- [24] I. C. Moraru, W. P. Pratt, Jr., and N. O. Birge, *Phys. Rev. Lett.* 96, 037004 (2006).
- [25] P. V. Leksin et al., *Phys. Rev. Lett.* 109, 695057005 (2012).
- [26] V. Aguilar, D. Korucu, J. A. Glick, R. Loloee, W. P. Pratt, Jr., N. O. Birge. *Phy. Ver. B* 102, 024518 (2020).
- [27] M. G. Flokstra, T. C. Cunningham, J. Kim, N. Satchell, G. Burnell, P. J. Curran, S. J. Bending, C. J. Kinane, J. F. K. Cooper, S. Langridge, A. Isidori, N. Pugach, M. Eschrig, and S. L. Lee, *Phys. Rev. B* 91, 060501 (2015).
- [28] A. C. Krohling, T. E. Bueno, V. P. Nascimento, C. Larica, K. Krambrock, F. J. Litterst, E. C. Passamani, *Appl. Phys. Lett.* 10 111, 262404 (2017).
- [29] A. Garifullin, *JETP Lett.* 106, 57 (2017).
- [30] M. Lange, M. J. Van Bael, Y. Bruynseraede, and V. V. Moshchalkov, *Phys. Rev. Lett.* 90, 1970061 (2003).
- [31] A. Paschoa, J. L. Gonzalez, E. C. Passamani. *Current Applied Ph.* 20, 888 (2020).
- [32] A. Paschoa, J. L. Gonzalez, V. P. Nascimento, E. C. Passamani. *J. Appl. Ph.* 128, 043902 (2020).

- [33] F. Gontad, A. Perrone. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 804, 132 (2015).
- [34] B. Gajar, S. Yadav, D. Sawle, K. K. Maurya, A. Gupta, R. P. Aloysius, S. Sahoo. Scientific Reports 9, 8811 (2019).
- [35] Z. Feng, J. W. A. Robinson, M. G. Blamire, APL 111., 042602 (2017).
- [36] T. C. Freitas. Filmes Finos Supercondutores de Nb e Híbridos Nb/[Co/Pd]: Nanoestruturação e Caracterização Estrutural, Magnética e Transporte Elétrico. Tese (Doutorado em Física) – Ufes, Vitória, (2017).
- [37] C. Rose-Innes, E.H. 2^o ed. Oxford (1978).
- [38] A. C. Rose-Innes and E. H. Rhoderick. Pergamon Press, 2nd edition, (1994).
- [39] M. Tinkham. 2a ed., McGraw-Hill, (1996).
- [40] C.S.L. Chun, G.G. Zheng, J.L. Vicent, IvanK. Schuller, PRB 29, 4915 (1984).
- [41] D.G. Naugle, R.E. Glover III, W. Moormann, Physica 55., 250 (1971).
- [42] A.I. Gubin, K.S. in, S.A. Vitusevich, M. Siegel, N. Klein, Phys. Rev. B 72., 064503 (2005).
- [43] H.K. Wong, J.B. Ketterson, J. Low Temperature Phys. 63., 139 (1986).
- [44] J.P. Locquet, D. Neerincx, H. Vanderstraeten, W. Sevenhans, C. Van Haesendonck, Y. Bruynseraede, H. Homma, IvanK. Schuller, Jpn. J. Appl. Phys. 26., 1431 (1987).
- [45] T. Schneider, J.P. Locquet, Physica C 179., 125 (1991).
- [46] Z.X. Gao, E. Osquiguil, M. Maenhoudt, B. Wuyts, S. Libbrecht, Y. Bruynseraede, Phys. Rev. Lett. 71., 3210 (1993).
- [47] P. G. Gennes. Phys. Lett. 23, 10 (1966).
- [48] A.W. Tsen, B. Hunt, Y.D. Kim, Z.J. Yuan, S. Jia, R.J. Cava, J. Hone, P. Kim, C.R. Dean, A.N. Pasupathy, Nat. Phys. 12., 208 (2016).
- [49] C. Sürgers, C. Strunk, H. v. Löhneysen, Thin Solid Films 239., 51 (1994).
- [50] E. I. Alessandrini, R. B. Laibowitz, J. M. Viggiano. J. of Vacuum Science and Technology 18., 318 (1981).
- [51] A. H. Farha, H. E. Elsayed-Ali. Surface and Coatings Technology., 206, 1168 (2011).

- [52] J. Liu, J. Li, T. Li, T. Li, W. Wu, W. Chen, IEEE Trans. Appl. Supercond. 19., 245 (2009).
- [53] D. Hazra, M. Mondal, A.K. Gupta, Phys. C 469., 268 (2009).
- [54] S. Bose, R. Banerjee, A. Genc, P. Raychaudhuri, H.L. Fraser, P. Ayyub, J. Phys. Condens. Matter 18., 4553 (2006).
- [55] U.D. Chacón Hernandez, M.A. Sousa, F.J. Litterst, V.P. Nascimento, E. BaggioSaitovitch, J. Magn. Magn. Mater. 390., 114 (2015).
- [56] D. Hazra, S. Datta, M. Mondal, J. Ghatak, P.V. Satyam, A.K. Gupta, J. Appl. Phys. 103., 103535 (2008).
- [57] S.K. Sinha, E.B. Sirota, and S. Garo_, X-ray and neutron scattering from rough surfaces, Phys. Rev. B 38., 2297 (1988).
- [58] K. Il'in, D. Rall, M. Siegel, A. Engel, A. Schilling, A. Semenov, et al., Phys. C Supercond. Its Appl 470., 953 (2012).
- [59] G. Verbanck, C. D. Potter, R. Schad, P. Belien, V.V. Moshchalkov, Y. Bruynseraede. 234., 240 (1994).
- [60] Y. Otani, D. Givord, JMMM 126., 622(1993).
- [61] F.E. Harper, M. Tinkham, Phys. Rev. 172., 441 (1968).
- [62] M.G. Karkut, V. Matijasevic, L. Antognazza, J.M. Triscone, N. Missert, M.R. Beasley, *et al.*, Phys. Rev. Lett. 60., 1751 (1988).
- [63] Y. Kozuka, M. Kim, C. Bell, B.G. Kim, Y. Hikita, H.Y. Hwang, Nature. 462., 487 (2009).
- [64] S. Bose, P. Raychaudhuri, R. Banerjee, P. Ayyub, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. 74., 224502 (2006).
- [65] O. V. Dobrovolskiy, M. Huth, Thin Solid Films. 520., 5985 (2012).
- [66] K. Fossheim, A. Sudbo, Wiley, England, 2004.
- [67] A. P. Guimaraes. Magnetismo e Ressonância Magnética em Sólidos. Rio de Janeiro. 1a ed, EDUSP. (2009).
- [68] Chien, C. L., and Reich, D. H., J. Magn. Magn. Mater., 200., 83 (1999).
- [69] E. O Savostina. N. A., Pertsev. Rev. Nanoscale., 56 (2019).
- [70] A. I. Buzdin, M. Y. Kupriyanov, JETP Lett. 52., 487 (1990).

- [71] A. I. Buzdin, M. Y. Kupriyanov, JETP Lett. 74., 124 (1992).
- [72] Z. Radovi'c, L. Dobrosavljevic-Grujic, Buzdin, A. I., Clem, J. R., Phys. Rev. B 44., 759 (1991).
- [73] C. Strunk, C. Sürgers, U. Paschen, H. V. Löhneysen. Phys. Rev. B 49., 4053 (1994).
- [74] J. S. Jiang, D. Davidovic, D. H. Reich, C. L. Chien. Phys. Rev. Lett. 74., 314 (1995).
- [75] J. S. Jiang, D. Davidovic, D. H. Reich, C. L. Chien., Phys. Rev. B 54., 6119 (1996).
- [76] T. Mühge, K. Theis-Bröhl, K. Westerholt, N. N. Garif'yanov, Y. V. Goryunov, I. A. Garifullin, G. G. Khaliullin., Phys. Rev. B 57., 5071 (1998).
- [77] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert. Phys. Rev. Lett. 61, 2472 (1988).
- [78] L. R. Tagirov., Phys. Rev. Lett. 83., 2058 (1999).
- [79] A. I. Buzdin, A. V. Vedyayev, and N. V. Ryzhanova, Eur. Phys. Lett. 48., 686 (1999).
- [80] S. Oh, D. Youm, and M. R. Beasley, Appl. Phys. Lett. 71., 2376 (1997).
- [81] Y. Gu, C. Y. You, J. S. Jiang, J. Pearson, Ya. B. Bazaliy, and S. D. Bader, Phys. Rev. Lett. 89., 267001 (2002).
- [82] I. C. Moraru, W. P. Pratt, Jr., and N. O. Birge, Phys. Rev. Lett. 96., 037004 (2006).
- [83] Ya. V. Fominov, A. A. Golubov, T. Yu. Karminskaya, M. Yu. Kupriyanov, R. G. JETP Lett. 91., 308 (2010).
- [84] P.V. Leksin, N.N. Garif'yanov, I. A. Garifullin, Ya. V. Fominov, J. Schumann, Y. Krupskaya, V. Kataev, O. G. Schmidt, and B. Büchner, Phys. Rev. Lett. 109., 057005 (2012).
- [85] X. L. Wang, A. Di Bernardo, N. Banerjee, A. Wells, F. S. Bergeret, M. G. Blamire, and J. W. A. Robinson, Phys. Rev. B 89., 140508 (2014).
- [86] F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, Phys. Rev. Lett. 86., 4096 (2001).
- [87] J. Linder and J. W. A. Robinson, Nature Phys. 11., 307 (2015).
- [88] C. A. Krohling. Manipulação das direções de anisotropias magnéticas em válvulas de spin depositadas em incidência oblíqua. Tese (Doutorado em Física) – Ufes, Vitória, (2019).

- [89] N. Amos, R. Fernandez, R. Ikkawi, B. Lee, A. Lavrenov, A. Krichevsky, D. Litvinov, and S. Khizroev, *J. Appl. Phys.* 103, 07E732 (2008).
- [90] A. S. Westover, K. Chesnel, H. Hatch, P. Salter, O. Hellwig, *J. Magn. Magn. Mater.* 399, 164 (2016).
- [91] L. Chen, T. M. Lu, G. C. Wang, *J. Appl. Phys.* 112., 024303 (2012).
- [92] V. P. Nascimento. Estudo das Interfaces Nas Multicamadas NiFe/FeMn/NiFe. Tese (Doutorado) - Centro Brasileiro de Pesquisas Fisicas. (2005).
- [93] J. M. D. M. D., Coey, *Magnetism and Magnetic Materials*, 1st ed., Cambridge University Press, New York, USA, (2010).
- [94] J. W. A. Robinson, S. Piano, G. Burnell, C. Bell, and M. G. Blamire, *Phys. Rev. B* 76., 094522 (2007).
- [95] M. Bouroushian, T. Kosanovic, *Characterization of Thin Films by Low Incidence XRay Diffraction*, *Cryst. Struct. Theory Appl.* 1., 35 (2012).
- [96] B. E. Warren. *X-ray Diffraction*. Dover Publication, United States of America, (1990).
- [97] J.F. Shackelford, *Ciência dos materiais*, 6th ed., Pearson, São Paulo, (2008).
- [98] B. D. Cullity. *Elements of X-ray Diffraction*. Addison-Wesley Pub. Co., Inc., United States of America, (1956).
- [99] A. Guinier. *X-Ray Diffraction: In Crystals, Imperfect Crystals, and Amorphous Bodies*. Dover Publication, United States of America, (1994).
- [100] B. E. Warren. *X-ray Diffraction*. Dover Publication, United States of America, (1990).
- [101] Colombi, P.; Agnihotri, D. K.; Asadchikov, V. E.; Bontempi, E.; Bowen, D. K.; Chang, C. H.; Depero, L. E.; Farnworth, M.; Fujimoto, T.; Gibaud, A.; Jergel, M.; Krumrey, M.; Lafford, T. A.; Lamperti, A.; Ma, T.; Matyi, R. J.; Meduna, M.; Milita, S.; Sakurai, K.; Shabel'nikov, L.; Ulyanenko, A.; Van der Lee, A.; Wiemer, C.; *Reproducibility in X-ray reflectometry: results from the first world-wide round-robin experiment*, *Journal of Applied Crystallography* 41., 143 (2008).
- [102] JAL, Emmanuelle, *These de Docteur: Réélectivité Magnétique Resonante de rayons X mous : une sonde de la distribution d'aimantation complexe au sein de films minces*¹⁰, Institut Néel/Ecole doctorale de physique de Grenoble/Université de Grenoble – Grenoble – França, (2013).
- [103] A. Y. Takeuchi. *Técnicas de Medidas Magnéticas*. 1a ed., Rio de Janeiro, Brasil: Centro Brasileiro de Pesquisas Fisicas-CBPF, (2010).

- [104] S. Foner. *Rev. Sci. Instrum.* 30., 548 (1959).
- [105] M. Emura. Propriedades magnéticas de ímãs aglomerados e nanocristalinos. Tese (Doutorado) – Universidade de São Paulo, (1999).
- [106] S. Foner. The vibrating sample magnetometer: Experiences of a volunteer (invited). *J. Appl. Phys.* 79., 4740 (1996).
- [107] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin. *Solid State Physics 1^a. Ed.*, Cengage Learning, New York, USA, (1976).
- [108] E. M. Giroto, I. A. Santos, Instituto de Química de São Carlos, Universidade de São Paulo. Medidas de Resistividade Elétrica DC em Sólidos: Como Efetuá-las Corretamente., *Quim. Nova* 25., 639 (2002).
- [109] L. M. Joshi, A. Verma, P. K. Rout, M. Kaur, A. Gupta, R. C. Budhani, *Physica C: Superconductivity and its applications* 542., 12 (2017).
- [110] W. R. Runyan, “*Semiconductor Measurements and Instrumentation*”, McGraw-Hill, New York, (1975).
- [111] S. M. Sze, “*Physics of Semiconductor Devices*”, 2a Edição, John Wiley & Sons, New York, (1981).
- [112] J.E. Villegas, J.L. Vicent, *PRB* 71., 144522 (2005).
- [113] M. Velez, C. Martinez, A. Cebollada, F. Briones, J.L. Vicent, *JMMM* 240., 580 (2002).
- [114] P. J. Jensen., K. H. Bennemann. *Surface Science Reports* 61.,129 (2006).
- [115] T.J. Hwang, D.H. Kim, *Physica C: Superconductivity and its applications* 540., 16 (2017).
- [116] S. Blundell, *Magnetism in Condensed Matter*, Oxford University press Inc, New York, pag. 2014 (Appendix D), (2009).
- [117] R.L. Coren, *JAP* 37., 230 (1966).
- [118] I. S. Beloborodov, A. V. Lopatin, V. M. Vinokur, and K. B. Efetov, *Review of Modern Physics* 79., 469 (2007).
- [119] H.P. Oepen, M. Benning, H. Ibach, C. M. Schneider and J. Kirschner, *J. Magn. Mater.* 86., 137 (1990).

Apêndice A

A.1 História da Supercondutividade

A ideia desta seção não é ter uma descrição histórica detalhada da supercondutividade, mas localizar o leitor com relação ao desenvolvimento da área. Dito isso, a descoberta da supercondutividade ocorreu em 1911, em Leiden na Holanda, pelo físico holandês Heike Kamerlingh Onnes [A1-A3]. Após a liquefação do Hélio em 1908, o grupo holandês estudava o comportamento da resistência elétrica de metais em baixas temperaturas $[R(T)]$. Quando investigava o mercúrio (Hg), Onnes observou que em uma temperatura definida, o sólido Hg possuía uma abrupta mudança no valor da sua resistência, ou seja, $R(T = 4,2 \text{ K})$ reduzia de um valor próximo de $0,125 \Omega$ para um valor $\sim 10^{-5} \Omega$, conforme mostrado na Fig. A.1. A temperatura onde essa queda da resistência elétrica atingia o menor valor $\sim 10^{-5} \Omega$, foi então definida como sendo a temperatura crítica de transição supercondutora e representada por T_c (na época Onnes chamavam de supracondutora a transição).

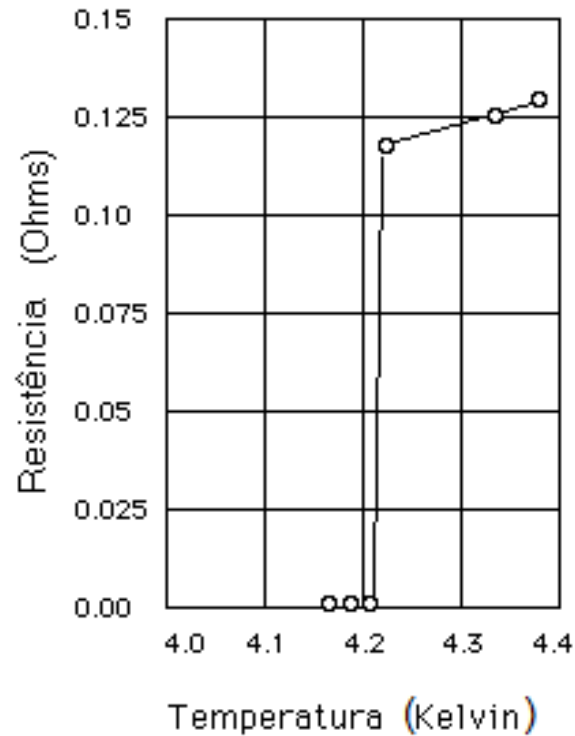


Figura A.1: Curva $R(T)$ obtida por Heike Kamerlingh Onnes em 1911 para uma amostra de Hg [A.1]. Figura modificada com relação ao original (nomes das grandezas em português).

Em 1933 [A.4], os físicos W. Meissner e R. Oschsenfeld demonstraram que a indução magnética (será usado, neste trabalho, campo magnético \vec{B} mesmo sendo um abuso de linguagem) era nula no interior de um material no estado supercondutor ($\vec{B}_{in} = \vec{0}$) quando o material supercondutor estivesse exposto à presença de campo magnético ($\vec{B} = \mu_o \vec{H}$) de intensidade inferior a um valor limite B_c . Essa propriedade do estado supercondutor lembra um diamagneto perfeito (Fig. A.2). Hoje, ela é considerada a impressão digital da supercondutividade e foi definida então como efeito Meissner-Oschsenfeld [A.4].

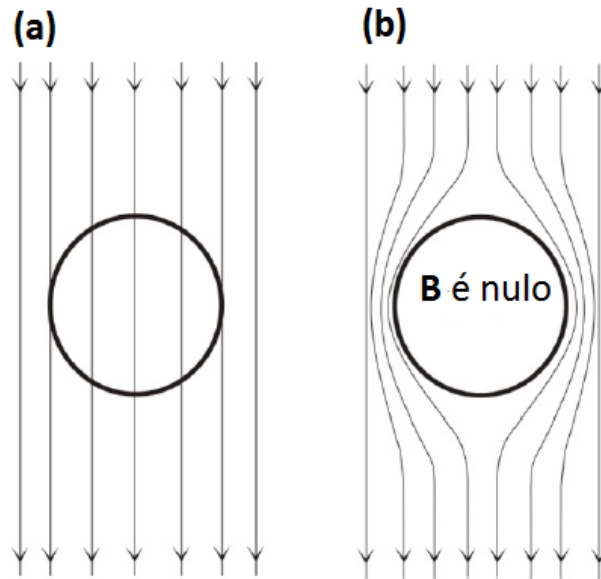


Figura A.2: Esquema mostrando linhas de campo magnético aplicado \vec{B} passando por uma seção transversal de um material supercondutor em duas temperaturas T fixas (a) para $T > T_c$ e (b) $T < T_c$.

Em 1935, os irmãos Fritz e Heinz London [A.5] propuseram a primeira formulação teórica capaz de explicar fenomenologicamente o efeito Meissner-Oschensfeld. Eles (usando um modelo clássico do eletromagnético) conseguiram prever o comprimento de penetração (λ_L) do campo magnético estático no material supercondutor a partir de sua superfície. Maiores detalhes são apresentados na literatura [A.6].

Em 1950, Vitaly Ginzburg e Lev Landau (Ginzburg-Landau: GL) também propuseram uma teoria fenomenológica baseada em observações experimentais e algumas suposições [A.7]. A teoria GL descreve as propriedades dos materiais supercondutores apresentadas até aqui de forma satisfatória. Ginzburg-Landau afirmaram que a supercondutividade deveria ser entendida como um fenômeno quântico macroscópico, de tal modo que a transição de fase de 2º ordem do estado normal (N) para o supercondutor (SC) fosse descrita por um parâmetro de ordem na forma de uma função de onda do tipo: $\psi = \Delta(T) e^{i\theta}$, onde $\Delta(T)$ é sua amplitude de probabilidade e θ a fase do parâmetro de ordem [A.7]. Eles ainda introduziram o conceito de comprimento de coerência (ξ); parâmetro esse que está relacionado com a variação espacial do condensado supercondutor, mais tarde chamado de condensado de pares de Cooper. Ginzburg-Landau também definiram o parâmetro κ através da razão entre o comprimento de

penetração λ_L e o comprimento de coerência ξ [$\kappa = \frac{\lambda(T)}{\xi(T)}$, conhecido como parâmetro de GL] [A.6,A.7]. Com o parâmetro κ , por exemplo, é possível explicar a existência de dois tipos de materiais supercondutores: o supercondutor do tipo-I (somente um campo crítico $B_C = B_{C1}$) e o supercondutor do tipo-II (dois campos críticos B_{C1} e B_{C2}) [A.8]. Maiores detalhes estão descritos em livros específicos sobre supercondutividade, por exemplo, os apresentados nas Referências [A.6,A.9].

No final da década de 50 surge o primeiro modelo microscópico para descrever o estado SC; modelo este proposto por John Bardeen, Leon Cooper e Robert Schrieffer, que hoje é conhecido como modelo (ou teoria) BCS [A.10]. A ideia central dessa teoria é que os elétrons, responsáveis pela supercondutividade, teriam uma interação atrativa que seria mediada por um fônon “virtual” da rede cristalina (fônon = quantum de vibração da rede cristalina) [A.6,A.9-A.10]. A proposta de interação sugere que a passagem de um dado elétron produz uma deformação da rede cristalina devido à atração Coulombiana com os núcleos da rede. Um segundo elétron, por sua vez, usa essa deformação da rede (“desbalanço nas cargas positivas da rede” pela passagem do 1º elétron) para reduzir a energia interna do sistema, acoplando-se com o primeiro elétron. Dessa forma, a interação seria do tipo elétron-fônon-elétron e esses elétrons emparelhados (no espaço dos momentos) são chamados de pares de Cooper e estão no estado S (spin total nulo). Vale mencionar que foi o físico alemão Herbert Fröhlich o primeiro a sugerir que a atração entre elétrons via fônons produzia um *gap* (banda proibida) de energia entre o estado fundamental supercondutor (SC) e o primeiro estado excitado normal (N) [A.11]. Além disso, Bardeen e David Pines [A.12] demonstraram que esse *gap*, ocasionado pela interação elétron-fônon, produzia uma atração entre elétrons relativamente maior do que sua repulsão Coulombiana. Foi assim que Cooper sugeriu que o valor da energia do *gap* (oriundo do acoplamento elétron-fônon-elétron) seria o valor mínimo necessário para destruir o estado SC [A.13].

A teoria BCS também prevê, devido ao valor máximo previsto pelo *gap* de energia, um valor limite para temperatura de transição do estado SC para o estado N (SC-N) de $T_C \sim 25 K$ [A.14]. Esse valor relativamente baixo de T_C vem parcialmente restringindo as aplicações tecnológicas dos supercondutores BCS,

exceto em sistemas operando com temperaturas criogênicas [$T < 20$ K]. Então, uma das grandes aplicações dos materiais supercondutores BCS é em construções de bobinas supercondutoras para geração de altos campos magnéticos (12 T, por exemplo) [A.15].

Em 1987, uma nova classe de materiais supercondutores foi descoberta, ou melhor, foi experimentalmente demonstrado o estado SC em materiais cerâmicos. Nestes materiais, os valores de T_c estavam acima da temperatura de ebulição do nitrogênio líquido (77 K), fato que potencializou a aplicação tecnológica dos supercondutores [A.16-A.17]. Em condições normais de pressão e temperatura, um dos maiores valores de T_c nos cerâmicos é de 132 K ($\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, sob altas pressões podendo chegar a um valor maior T_c) [A.18]. Devido aos altos valores de T_c , atualmente esses supercondutores cerâmicos são conhecidos com high- T_c e não são plenamente descritos pela teoria BCS. Mais recente e curioso, foi a demonstração da existência do estado supercondutor em materiais a base de Fe [A.19-A.21], onde não se esperava à existência do estado SC devido a presença de um possível estado ferromagnético (FM) dos átomos de Fe, ou seja, o estado ferromagnético (FM) e supercondutor (SC), sempre foram antagônicos: a existência de um, proíbe a presença do outro.

Aqui entra um dos pontos chave desse trabalho, a busca do entendimento da “coexistência” entre ferromagnetismo (FM) e supercondutividade (SC) em um mesmo material compósito (não significa estar na mesma fase do material). Como ainda não há menção na literatura, com exatidão, de um material onde há coexistência entre FM e SC, uma maneira experimental é a construção de materiais artificialmente estruturados a partir de preparação e desenvolvimento de filmes finos conjugados em forma de multicamadas compostas por empilhamentos de camadas FM e SC, ou seja, com interfaces FM/SC. Nestes sistemas os elétrons de uma dada fase (SC ou FM) podem “tunelar” e persistir dentro da outra fase, mudando mutuamente as propriedades das duas fases. Esses sistemas são conhecidos como híbridos por possuírem a interface FM/SC e apresentarem algumas das características acima mencionadas.

Nos sistemas híbridos (SC/FM) é possível estudar vários efeitos recíprocos, ou seja, influência da supercondutividade sobre o magnetismo e vice-versa. Em particular, há um interesse recente no entendimento do efeito: (i)

de proximidade SC, onde há tunelamento dos pares de Cooper (estado S) no interior da camada FM; camada essa que poderá ter ou não uma distribuição homogênea de magnetização, (ii) da interação do campo magnético disperso (*stray field*) produzido pela camada FM sobre o estado SC (efeito orbital) [A.22-A.24] e (iii) de polarização de spins dos elétrons de condução, por exemplo, de uma camada espaçadora inserida entre as camadas FM e SC [A.25]. Agora antes da descrição das observações experimentais e modelos que descrevem as propriedades de sistemas híbridos SC/FM, algumas propriedades SC serão apresentadas e discutidas brevemente para uma melhor compreensão dos efeitos que serão discutidos nesta tese.

A.2 Supercondutividade: Correlação entre Propriedades e Modelos Físicos

A.2.1 Propriedades Supercondutoras de materiais SC-I e SC-II

Os supercondutores do tipo-I (SC-I) exibem apenas ou estado normal (N) ou o de Meissner (SC) ao se variar temperatura T e campo magnético \vec{B} , conforme ilustrado na Fig. A.3 (a). Desta figura esquemática, é possível notar que à medida que a temperatura T da amostra aumenta, há uma redução não linear no valor de campo magnético crítico, que leva o material a fazer a transição SC-N. Além disso, como $\vec{B}_{in} = \vec{0}$, a magnetização induzida no estado SC é contrária à direção do campo aplicado, $\vec{M} = -\vec{B}$. Portanto, em uma curva $M(H)$ é esperado um comportamento linear no segundo (quarto) quadrantes para valores negativos (positivos) de campo magnético aplicado B . Os supercondutores tipo-II (SC-II) exibem dois campos críticos, o inferior, $B_{c1}(= \mu_0 H_{c1})$, e o superior $B_{c2}(= \mu_0 H_{c2})$, como mostrado na Fig. A.3 (b). Novamente, ambos os campos críticos dependem não linearmente da T . Uma característica marcante é que nos SC-II há um estado chamado de misto. Nesse estado misto, há penetração do campo magnético (conhecido como estado de vórtice). Assim, em uma curva $M(H)$ primeiramente há o comportamento linear entre M e B ($\vec{M} = -\vec{B}$) até atingir o valor de B_{c1} devido ao estado SC puro (estado Meissner). Para valor de $B > B_{c1}$, o valor da magnetização induzida reduz à medida que o valor do campo aplicado \vec{B} aumenta até zerar toda magnetização

induzida. Esse valor de campo magnético é chamado de campo crítico superior B_{c2} . O laço de histereses completo $[M(H)]$ de um SC-II é conhecido como laço tipo estrela [A.26]. Os campos críticos de ambos os tipos de supercondutores variam com a temperatura e são nulos na temperatura T_c de transição SC-N, conforme sugere o esquema da Fig. 2.3 (b).

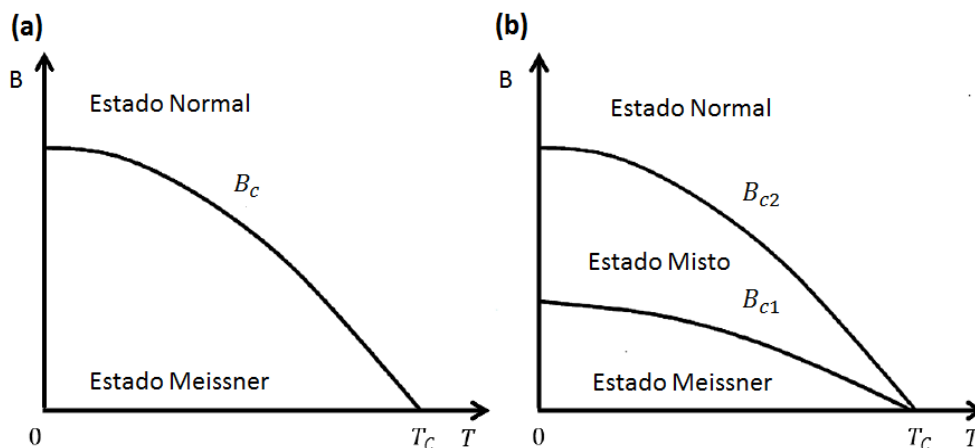


Figura A.3: Relação entre campo magnético aplicado versus temperatura para (a) supercondutor do tipo-I e (b) supercondutor do tipo-II (b) [A.27].

A.2.2 Estado de Vórtices

Como abordado acima e na literatura [A.6,A.9], o fenômeno da supercondutividade pode ser descrito com base na teoria de GL. As duas grandezas físicas mais relevante na teoria GL são: (i) o parâmetro de ordem supercondutor ψ e (ii) o vetor potencial \vec{A} . Em sua versão mais simples, $\psi = |\psi| e^{i\theta}$, ou seja, ψ é um parâmetro de ordem complexo que descreve os elétrons emparelhados responsáveis pelo estado.

A versão para entendimento dos SC da teoria de GL foi desenvolvida por Abrikosov em 1957 [A.8]. Abrikosov procurou descrever o comportamento dos SC convencionais de baixas temperaturas ($T_c < 25$ K). O diagrama de fase $B(T)$, mostrado na Fig. A.3, descreve a fase de Meissner (caracterizada pela expulsão completa do fluxo magnético na condição $B < B_{c1}$) separada do estado normal (condição: $B > B_{c2}$) pela fase mista. Como já dito, na fase mista o campo magnético aplicado penetra parcialmente no material supercondutor em forma

de vórtices. Com isso, a teoria de GL prevê que o campo crítico inferior $B_{c1}(T)$ está correlacionado com o comprimento de penetração de London λ_L , sendo a escala de comprimento que determina a resposta eletromagnética do supercondutor. O fluxo magnético, delimitado em vórtice, é quantizado (*quantum* de fluxo magnético) em unidades de,

$$\Phi_0 = \frac{hc}{2e} \sim 2 \cdot 10^{-7} Gcm^2 \quad (A.1)$$

Havendo aumento no campo magnético aplicado (\vec{B}), a densidade de vórtices aumenta até que a densidade de vórtices seja tão alta que há forte superposição desses vórtices, provocando a transição SC-N. Assim, é definido que o campo crítico superior $B_{c2}(T)$ está intimamente correlacionado com o comprimento de coerência ξ do estado supercondutor. Em outras palavras, há uma segunda escala de comprimento fundamental no estado SC que determina a resposta espacial do parâmetro de ordem ψ [A.28].

Esses vórtices podem se organizar em topologias regulares conhecidas como rede de vórtices. Foi Abrikosov que propôs que, no estado misto, os vórtices não penetram no SC em um único domínio, mas são distribuídos em um arranjo regulares de tubos de fluxo magnéticos [A.6,A.29]. Abrikosov estudou dois arranjos regulares: uma rede quadrada e outra triangular (hexagonal) de vórtices, conforme mostrado na Fig. A.4. A rede triangular é a mais estável energeticamente, e é conhecida como rede de Abrikosov.

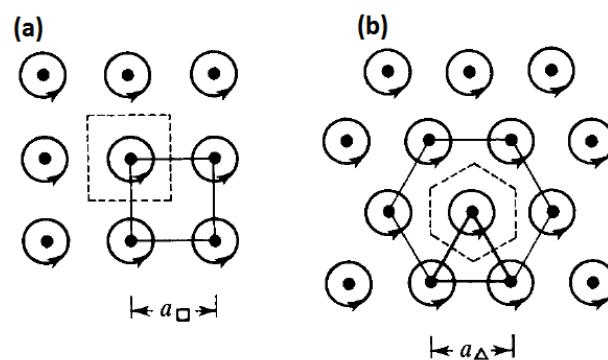


Figura A.4: Diagrama das redes de vórtices (a) quadradas e (b) triangulares. As linhas pontilhadas mostram a célula unitária [A.9].

Quase todas as propriedades interessantes dos SC-II estão correlacionadas com vórtices ou com estados mistos. As propriedades mais interessantes do estado misto são o seu elevado valor de B_{c2} e sua capacidade de carregar uma densidade de corrente (\vec{j}) com essencialmente nenhuma dissipação térmica. Diferentemente do caso de um SC-I, a densidade de corrente flui não somente na superfície, mas também por todo o corpo do material. Assim, haverá uma força eletromagnética, a força de Lorentz $\vec{F}_L = \vec{j} \times \vec{B}$, sobre os vórtices, fazendo com que os vórtices se movam transversalmente à corrente. É importante também dizer que os vórtices tendem a se fixarem, reduzindo sua energia, nas imperfeições presentes do material, tais como: impureza, defeitos pontuais, região de contorno de grãos, etc. Logo, se a força de Lorentz não for suficientemente intensa, os vórtices podem permanecer estacionários [A.6,A.29].

A.2.3 Teoria BCS da Supercondutividade

A teoria microscópica desenvolvida por Bardeen, Cooper e Schrieffer para descrever o estado SC, gerado pela interação elétron-fônon, é conhecida também como a teoria BCS. Há excelentes livros publicados sobre a teoria BCS, caso maiores detalhes sejam necessários [A.6,A.9,A.29]. Em 1972, Bardeen, Cooper e Schrieffer foram laureados com o prêmio Nobel de Física. A teoria BCS considera que o mecanismo da supercondutividade se dá pela formação de pares de elétrons chamados de “pares de Cooper” [A.13]. Esses pares de Cooper são formados por dois elétrons, que possuem *spins* e momentos opostos $[|\uparrow, \vec{p}\rangle \text{ e } |\downarrow, -\vec{p}\rangle]$ e estão acoplados por uma interação atrativa gerada pela deformação da rede cristalina. No seu estado fundamental, os pares de Cooper (quasi-partículas do tipo de Bose-Einstein) estão no estado de spin total nulo, chamado de singleto (S). Seu estado excitado possui spin total unitário e é chamado de estado tripleto (T). Como o estado T tem energia cinética maior que o S, a transição S-T dos pares de Cooper tem sido usada para descrever o efeito de proximidade (efeito válvula de spin supercondutora – efeito VSS) em sistemas híbridos SC/FM [A.30]. Na Fig. A.5 é apresentada uma ilustração dos pares de Cooper se movendo na rede cristalina. Dentro de uma interpretação clássica, uma vez que a velocidade do elétron é muito maior que a velocidade de

propagação do fônon na rede cristalina, há um atraso na propagação da deformação em relação ao elétron que o criou, tornando o acoplamento entre os elétrons um mecanismo aceitável e que ocorre em todo o material no estado SC.

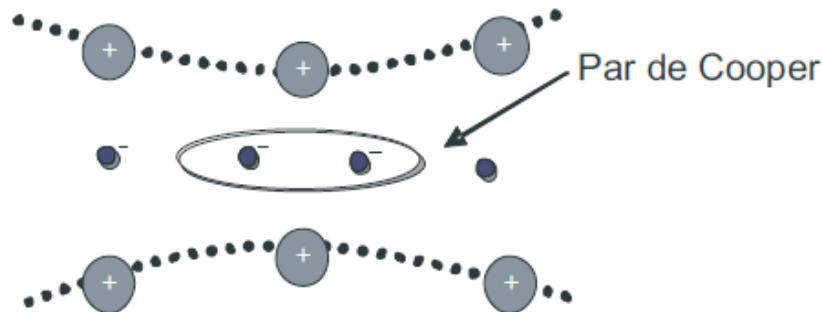


Figura A.5: Esquema mostrando o movimento do par de Cooper por uma rede cristalina. As distorções da rede são provocadas pela passagem de um elétron que acarreta na atração de outro [A.31].

Como dito acima, a energia da interação elétron-fônon-elétron provoca um *gap* (Δ) nas bandas de energia de condução do material SC; *gap* (Δ) este que reduz a energia total do sistema. Assim, a teoria BSC prevê que a energia de ligação dos pares de Cooper é da ordem de 2Δ . Quando a temperatura (energia térmica) for superior a 2Δ , os pares de Cooper serão rapidamente aniquilados e a supercondutividade é destruída. Outras características fundamentais da teoria BCS foram as descrições, com satisfatória concordância, de vários fenômenos experimentais observados. Dentre eles, são citados, pelo menos, três:

- A temperatura crítica T_C variando com a massa dos átomos (efeito isótopo), caso a supercondutividade seja devido à formação dos pares de Cooper [A.32];
- A temperatura crítica supercondutora T_C ser diretamente proporcional ao valor do *gap* Δ , tal que: $\Delta(0) = 1,76 k_B T_C$, onde k_B é a constante de Boltzmann e $\Delta(0)$ é o valor do *gap* em $T = 0$ K [A.33];
- Prevê o comportamento exponencial observado experimentalmente com medidas de calor específico, isto é, $C = \Gamma e^{-\gamma/k_B T}$, onde Γ e γ são constantes próprias do material [A.34].

A. Referências

- [A.1] H. K., Onnes. Comm. Leiden., 120b (1911).
- [A.2] H. K., Onnes. Comm. Leiden., 122b (1911).
- [A.3] H. K., Onnes. Comm. Leiden., 124c (1911).
- [A.4] W. Meissner, R. Ochsenfeld, Naturwiss, 21, 787 (1933).
- [A.5] F. London and H. London. Proc. Roy. Soc., A149:71, (1935).
- [A.6] A. C. Rose-Innes and E. H. Rhoderick. Pergamon Press, 2nd edition, (1994).
- [A.7] V. L. Ginzburg e L. D. Landau, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 20, 1064 (1950).
- [A.8] A. A. Abrikosov. Sov. Phys. JETP, 5:1174, (1957).
- [A.9] M. Tinkham. 2a ed., McGraw-Hill, (1996).
- [A.10] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. 108:1175–1204, Dec. (1957).
- [A.11] H. Fröhlich, Proceedings of the Royal Society, (London) A 215, 291 (1952).
- [A.12] D. Pines, J. Bardeen, Physical Review 99, 1140 (1955).
- [A.13] L.N. Cooper, Physical Review 104, 1189 (1956).
- [A.14] M. Cyrot. Singapore:World Scientific, (1995).
- [A.15] A. M. Luiz, Superconductivity – Theory and Applications, 1a ed., (2011).
- [A.16] J. G. Bednorz and K. A. Müller. Phys. B 64, 189 (1986).
- [A.17] S. N. Putilin, E. V. Antipov, A. M. Abakumov, M. G. Rozova, K. A. Lokshin, D. A. Pavlov, A. M. Balagurov, D. V. Sheptyakov, and M. Marezio. Phys. C. 338, 52 (2000).
- [A.18] H. Takahashi, A. Tokiwa-Yamamoto, N. Môri, S. Adachi, H. Yamauchi, S. Tanaka. Physica C, 218, (1993).
- [A.19] C. Wang, L. Li, S. Chi, Z. Zhu, Z. Ren, Y. Li, Y. Wang, X. Lin, Y. Luo, S.. EPL (Europhysics Letters) 83, 67006 (2008).
- [A.20] F. Hsu , Y. Luo, K. Yeh, T. Chen, T. Huang, P. Wu, Y. Lee, Y. Huang, Y. Ch, D. Yan, M. Wu. PNAS 105, 38 (2008).

[A.21] S. Medvedev, T. M. McQueen, I. A. Troyan, T. Palasyuk, M. I. Erements, R. J. Cava, S. Naghavi, F. Casper, V. Ksenofontov, G. Wortmann & C. Felser. *Nature Materials* 8, 630 (2009).

[A.22] Buzdin, A. I., *Rev. Mod. Phys.* 7., 935 (2005).

[A.23] A. Garifullin, *JETP Lett.* 106, 57 (2017).

[A.24] M. Lange, M. J. Van Bael, Y. Bruynseraede, and V. V. Moshchalkov, *Phys. Rev. Lett.* 90, 1970061 (2003).

[A.25] T.Y. Karminskaya, A.A. Golubov, M.Y. Kupriyanov, *Phys. Rev. B* 84, 064531 (2011).

[A.26] T. C. Freitas. *Filmes Finos Supercondutores de Nb e Híbridos Nb/[Co/Pd]: Nanoestruturação e Caracterização Estrutural, Magnética e Transporte Elétrico.* Tese (Doutorado em Física) – Ufes, Vitória, (2017).

[A.27] K. Fossheim, A. Sudbo, Wiley, England, (2004).

[A.28] G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur. *Rev. Mod. Phys.* 66., 1125 (1994).

[A.29] A. C. Rose-Innes, E.H. 2^o ed. Oxford (1978).

[A.30] Ya. V. Fominov, A. A. Golubov, T. Yu. Karminskaya, M. Yu. Kupriyanov, R. G. Deminov, and L. R. Tagirov. *JETP Lett.* 91, 308 (2010).

[A.31] M. B. S. Costa, A. C. Pavão. *Rev. Brasileira de Ensino de Física*, v. 34, n. 2, 2602 (2012).

[A.32] E. Maxwell. *Phys. Rev.* 78., 477 (1950).

[A.33] P. Townsend and J. Sutton. Ta, Sn, and Pb. *Phys. Rev.* 128., 591 (1962).

[A.34] H. A. Boorse. Superconducting electronic specific heats, the “exponential law,” and the Bardeen, Cooper, Schrieffer theory. *Phys. Rev. Lett.* 2., 391 (1959).

Apêndice B

Magnetron *Sputtering*

Neste apêndice há algumas definições básicas e uma breve discussão sobre o processo de deposição por *Sputtering*.

Os filmes são camadas de vapores atômicos/moleculares de materiais que são depositadas sobre uma superfície (substrato) com temperatura menor do que a do vapor atômico. Um exemplo cotidiano, seria o vapor de água quente de um chuveiro depositado sobre os vidros de um banheiro fechado. Cientificamente falando, para ser considerado filmes finos (nanoestruturas) as espessuras dos depósitos devem estar entre algumas monocamadas atômicas até, no máximo, cem (100) nanômetros de espessura ($d < 100 \text{ nm}$) [B.1].

Em particular, para produção de nanoestruturas metálicas em forma de filmes há necessidade de que a deposição dos vapores atômicos seja realizada em um ambiente de ultra-alto-vácuo (UAV) que, por sua vez, impede significativamente um possível processo de reação química indesejável ao feixe atômico de vapor (consequentemente do filme depositado) e reduz a dispersão do feixe de vapor atômico (espalhamento pelo gás residual) que chega ao substrato. Quanto melhor for o ambiente de UAV, menores podem ser as taxas de deposição dos feixes atômicos, consequentemente mais viável os crescimentos epitaxiais de camadas sobre um dado substrato. Por outro lado, a produção dos feixes de vapores atômicos pode ser obtida por vários processos (evaporação térmica, canhão de elétrons, bombardeamento de íons, entre outros) que, em geral, estão também correlacionados com o processo usado na preparação dos filmes finos.

Se por um lado, a preparação dos filmes depende de vários fatores experimentais do processo (tipo de UAV, atmosfera da câmara de deposição, taxa de deposição, tipo de substratos, temperatura do substrato, entre outros), por outro lado, a aplicação tecnológica dos filmes depende da viabilidade da técnica do método (custo, reprodução de resultados, quantidade de filmes por dia, flexibilidade etc.). Dentre os principais métodos de deposição de filmes

metálicos, tem sido amplamente empregado na indústria o método de *Magnetron Sputtering* (pulverização catódica), pois possui alta eficiência e tem uma ótima reprodutibilidade dos seus resultados.

Nesse método, os feixes de vapores atômicos são produzidos por bombardeamentos dos alvos, que se deseja produzir o filme, por íons de gases nobre. Em geral, átomos de argônio (Ar) é usado, para obtenção do plasma, devido ser eficiente, ter baixo potencial de ionização e ser mais barato (mais abundante) entre os demais gases nobres. Dessa forma, os íons Ar^+ , que são acelerados por uma diferença de potencial quando dentro da região do alvo (*Magnetron*), bombardeiam um determinado alvo (cátodo), transferindo momentum linear, conseqüentemente tendo probabilidade não nula de arrancar átomos/moléculas do alvo. Para ejeção (cuspi) atômica do alvo, a energia dos íons Ar^+ deve, no mínimo, ser superior a quatro vezes a entalpia (H_{alvo}) de formação do material do alvo ($E_{\text{Ar}^+} > 4 H_{\text{alvo}}$). Em outras palavras, através da transferência de momentum linear dos íons Ar^+ , os átomos da superfície do alvo são tornados voláteis e são transportados sob a forma de vapor atômico/molecular para o substrato, que é colocado diretamente na frente do vapor atômico para produção do filme, conforme esquematizado na Fig. B.1.

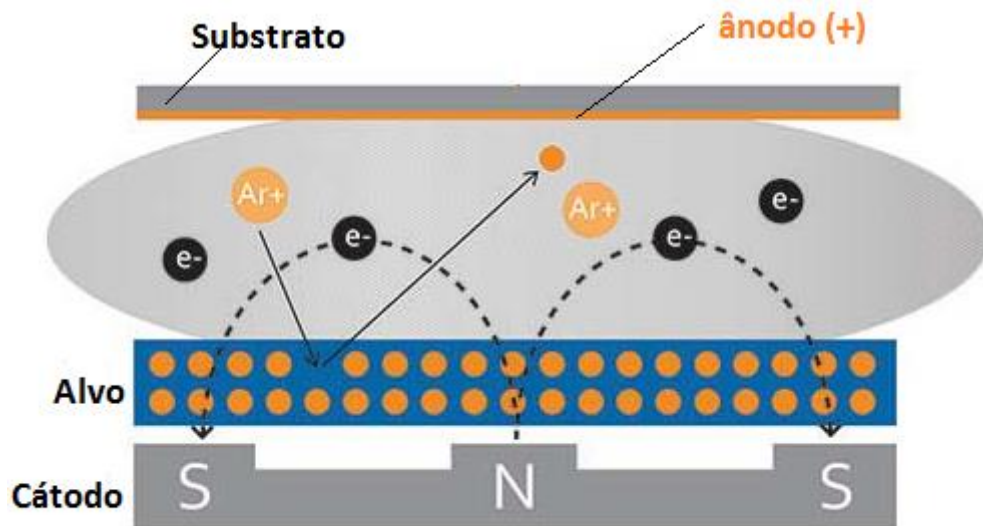


Figura B.1: Esquema de uma fonte *Magnetron Sputtering* contendo o material do alvo (azul com bolas laranjas representando os átomos/moléculas que são ejetadas), a configuração dos ímãs permanentes responsáveis em manter estável o plasma (estado misto de elétrons + íons de Ar^+), o substrato (cinza) onde é depositado o filme dos átomos ejetados (laranja) (cátodo representa o alvo + os ímãs = base da *Magnetron*).

B. Referências

[B.1] A. P. Guimarães, Nanoscience and Technology; Principles of Nanomagnetis, 2a ed., Springer, (2009).

Apêndice C

Neste apêndice está sendo disponibilizado um conjunto de medidas de DRX realizadas nas heteroestruturas híbridas dos sistemas com Nb ($d_{\text{Nb}} = 100 \text{ nm}$) estudadas nesta tese.

Medidas estruturais das heteroestruturas híbridas Nb100/Cu5/Co40, Nb100/Cu5/Py2 e tipo válvulas de spin supercondutoras VSS100

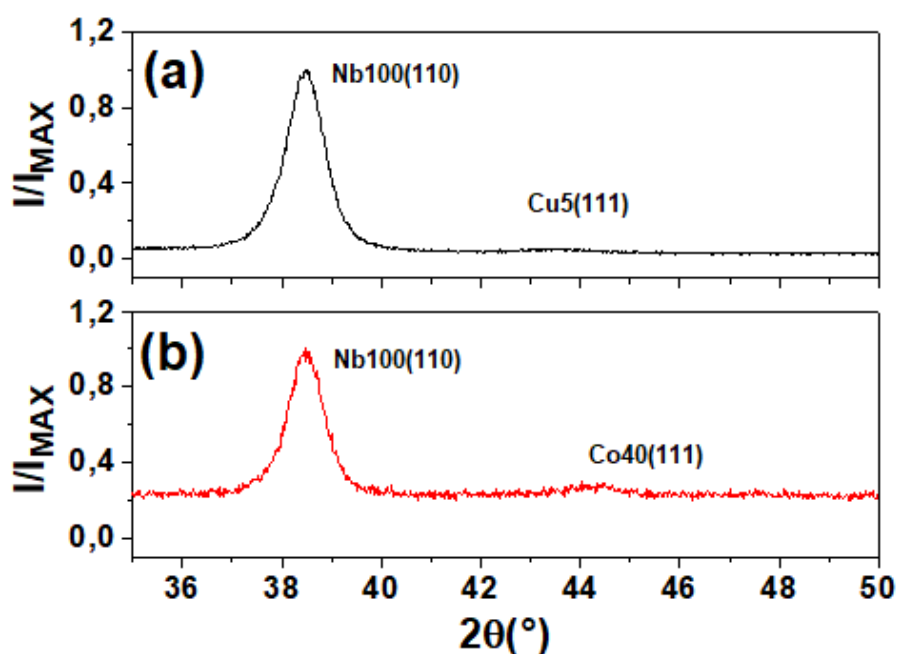


Figura C.1: Padrões DRX dos filmes híbridos (a) Si(100)/Nb100/Cu5/Py2 e (b) Si(100)/Nb100/Cu5/Co40.

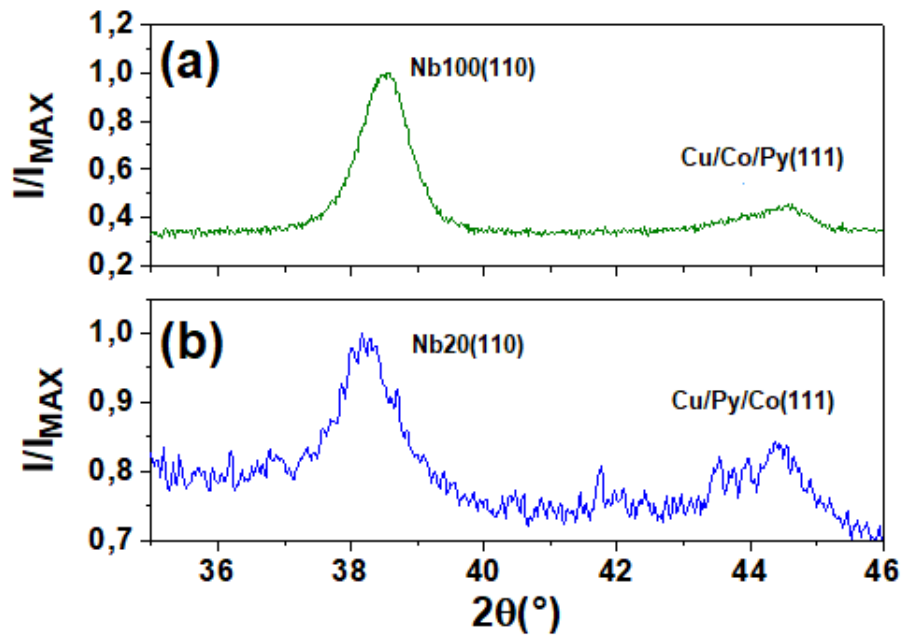


Figura C.2: Padrões DRX dos filmes híbridos (a) Si(100)/Nb100/Cu5/Py2/Cu5/Py2VSS100 e (b) Si(100)/Nb20/Cu5/Co40Cu5/Py2VSS20.

Apêndice D

Neste apêndice está sendo disponibilizado um conjunto de medidas de magneto-transporte realizadas nas amostras estudadas nesta tese, com intuito de contribuir para o melhor entendimento do leitor.

Medidas de magneto-transporte $[R(T,B,\theta)]$ das amostras puras de Nb(d_{Nb}) (onde $d_{Nb} = 20$ ou 100 nm de espessura), das heteroestruturas híbridas Nb(d_{Nb})/Cu5/Co40, Nb(d_{Nb})/Cu5/Py2 e das heteroestruturas híbridas do tipo VSS Nb(d_{Nb})/Cu5/Py2/Cu5/Co40

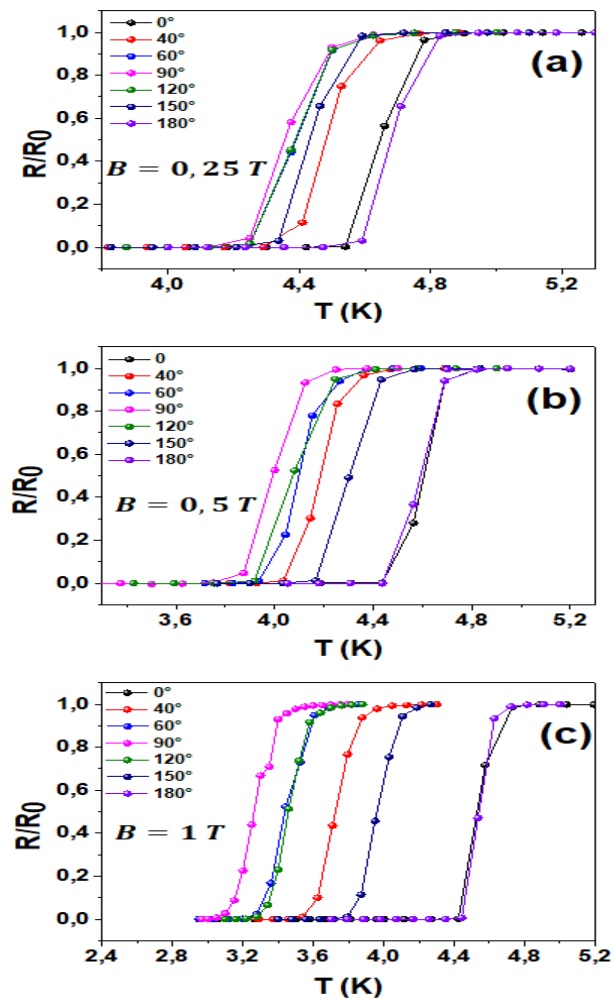


Figura D.1: Curvas de R/R_0 para a amostra de Nb20 em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] que o campo B foi aplicado ao plano da amostra e em diferentes valores; (a) 0,25 T, (b) 0,5 T e (c) 1 T.

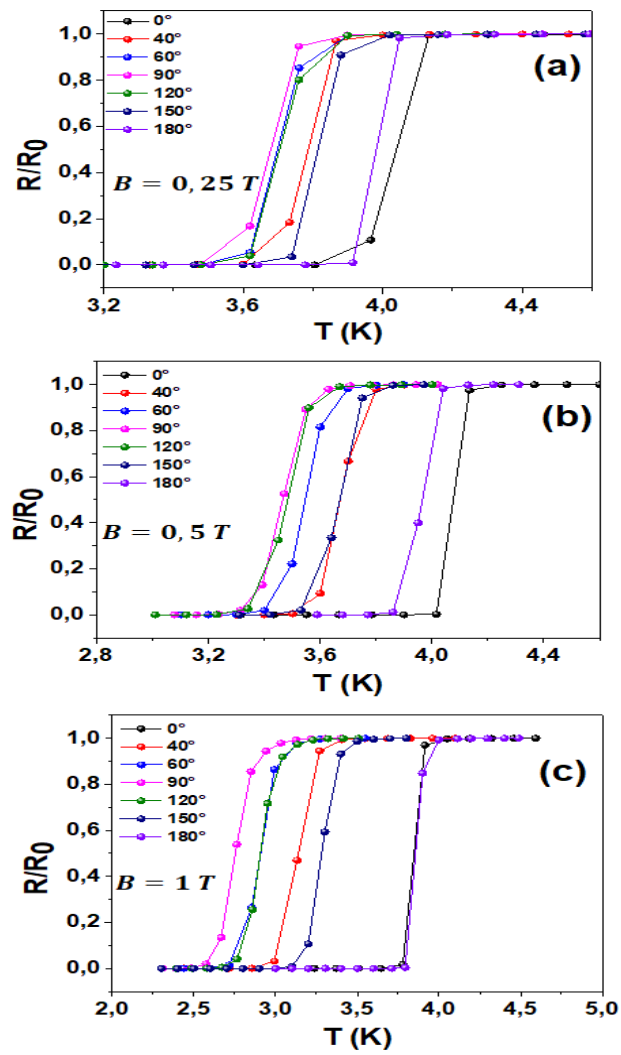


Figura D.2: Curvas de R/R_0 para a amostra híbrida Nb20/Cu5/Co40 em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] em que o campo B foi aplicado ao plano da amostra e em diferentes valores; (a) 0,25 T, (b) 0,5 T e (c) 1 T.

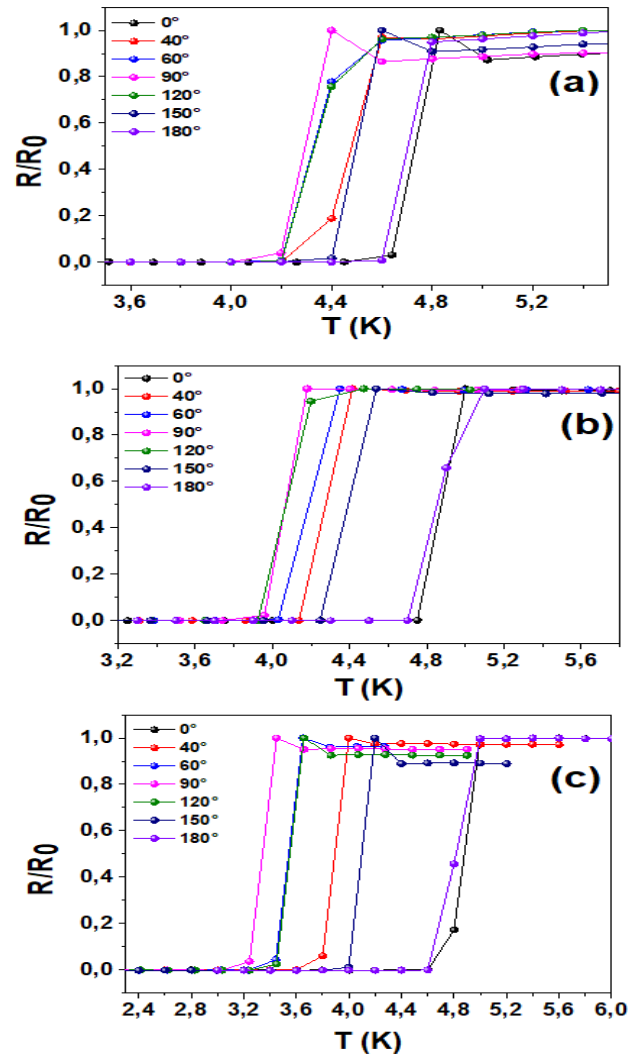


Figura D.3: Curvas de R/R_0 para a amostra híbrida Nb20/Cu5/Py2 em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] em que o campo B foi aplicado ao plano da amostra e em diferentes valores; (a) 0,25 T, (b) 0,5 T e (c) 1 T.

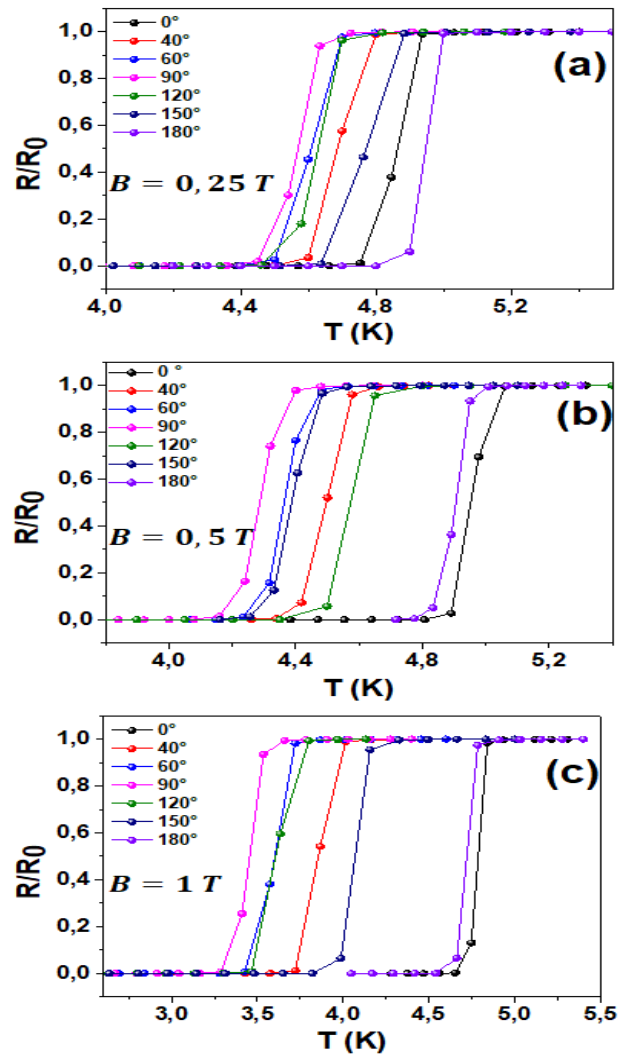


Figura D.4: Curvas de R/R_0 para a amostra híbrida tipo VSS Nb20/Cu5/Co40/Cu5/Py2 em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] em que o campo B foi aplicado ao plano da amostra e em diferentes valores; (a) 0,25 T, (b) 0,5 T e (c) 1 T.

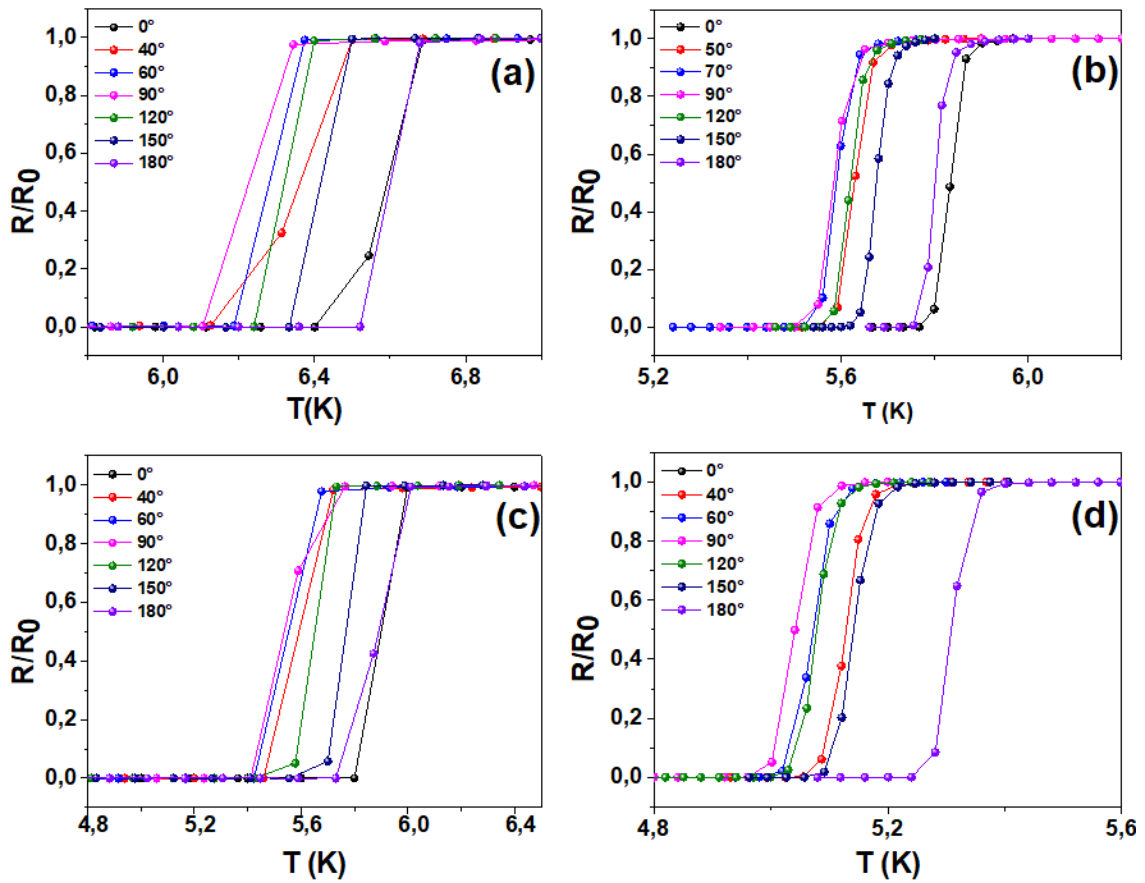


Figura D.5: Conjunto de curvas de R/R_0 para a amostra (a) Nb100, (b) Nb100/Cu5/Co40, (c) Nb100/Cu5/Py2 e tipo (d) VSS100 [Nb100/Cu5/Py2/Cu5/Co40] em diferentes configurações [ângulos ($^\circ$)] em que o campo B foi aplicado ao plano da amostra em $B = 0,5$ T.