

# Influência de uma Camada Separadora Supercondutora em Válvulas de Spin

Ury Denver Chacón Hernández

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - CBPF/MCT  
Rio de Janeiro, Brasil  
2016

Tese submetida ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas  
sob orientação da Professora **Elisa Maria Baggio Saitovitch**  
para a obtenção do título de Doutor em Física

2016

*Para Mariana, Nicollet y Hernan David  
No dejen que sus sueños se pierdan.*

# Agradecimentos

Desejo expressar meu reconhecimento mais profundo à Professora Elisa Baggio Saitovitch pela oportunidade dada para a realização deste trabalho.

Estendo meu reconhecimento ao Doutor Carsten Enderlein pelas valiosas discussões, prezada ajuda e proveitosas sugestões realizadas no desenvolvimento desta tese. Ao Doutor Marcos Antonio Sousa pelo apoio e a colaboração no desenvolvimento das amostras no trabalho e publicação dos resultados desta tese. A meus colegas Isabel Castro Merino e Julian Munevar Cagigas pelo apoio e ajuda. Agradeço ao José Ricardo e à Elisabete Vicente de Souza, aos funcionários da biblioteca e da secretaria da coordenação pela ajuda sempre oportuna.

Especialmente agradeço à Viana Karina Murillo Lopez pela boa vontade comigo, pelo apoio incondicional, os gratos momentos e a inspiração para seguir na procura de meus sonhos.

Agradeço também à minha família, meu pai José Noel Chacón e meus irmãos Dayana e Wilfreyer Chacón, que mesmo de longe deram apoio fundamental e estiveram preocupados comigo em todos os momentos. Aos meus amigos: Andrés Gachancipá, Hernan Dario Bernal, John Edwin Pacheco, agradeço contar com sua amizade, como vocês podem contar comigo. Aos amigos e colegas do CBPF, pelos gratos momentos. Agradeço também a todas as pessoas que de uma ou outra maneira contribuíram para a realização desta tese.

Este trabalho foi desenvolvido no CBPF, mediante uma bolsa concedida pelo Governo do Brasil, através do CNPq.

# Conteúdo

Resumo	vi
<b>INTRODUÇÃO</b>	<b>1</b>
<b>1 Aspectos Gerais</b>	<b>3</b>
1.1 Crescimento de Filmes Finos . . . . .	3
1.2 Magnetorresistência Gigante (GMR) . . . . .	5
1.2.1 Espalhamento Dependente de <i>Spin</i> . . . . .	7
1.3 Efeito <i>Exchange Bias</i> . . . . .	8
1.4 Válvulas de <i>Spin</i> . . . . .	11
1.4.1 Acoplamento Casca de Laranja ( <i>orange-peel</i> ) de Néel . . . . .	14
1.5 Supercondutividade . . . . .	17
1.5.1 Vórtices . . . . .	19
1.5.2 Efeito Meissner Paramagnético . . . . .	20
1.6 Sistemas híbridos Supercondutor/Ferromagnético . . . . .	24
1.6.1 Aspectos Gerais dos Sistemas Híbridos Ordenados SC/FM . . . . .	24
1.6.2 Válvulas de <i>Spin</i> Supercondutoras . . . . .	25
1.6.3 Sistemas Híbridos de multicamadas Nióbio / FM . . . . .	36
<b>2 Técnicas Experimentais</b>	<b>41</b>
2.1 Técnica de Pulverização Catódica <i>Magnetron Sputtering</i> . . . . .	41
2.2 Caracterização por Difração de Raios-X . . . . .	44
2.2.1 Refletividade ou Difração em Baixos Ângulos . . . . .	44
2.2.2 Difração em Altos Ângulos . . . . .	48
2.3 Técnicas Realizadas com PPMS DynaCool . . . . .	50
2.3.1 Magnetometria . . . . .	50
2.3.2 Transporte Elétrico . . . . .	52
<b>3 Preparação das Válvulas de <i>Spin</i></b>	<b>54</b>
3.1 Limpeza dos Substratos . . . . .	55
3.2 Deposição das Camadas . . . . .	55

3.2.1	Válvulas de <i>Spin</i> Preparadas . . . . .	57
<b>4</b>	<b>Análise e Discussão de Resultados</b>	<b>58</b>
4.1	Família de Válvula de <i>Spin</i> com Co/Nb/Co . . . . .	58
4.1.1	Difração de Raios-X: propriedades estruturais . . . . .	59
4.1.2	Medidas de Transporte Elétrico . . . . .	63
4.1.3	Medidas de Magnetização . . . . .	65
4.2	Família de Válvula de <i>Spin</i> com NiFe/Nb/NiFe . . . . .	75
4.2.1	Difração de Raios-X; propriedades estruturais . . . . .	75
4.2.2	Medidas de Transporte Elétrico . . . . .	81
4.2.3	Medidas de Magnetização . . . . .	83
4.2.4	Influência da camada <i>buffer</i> nas propriedades magnéticas e supercondutoras das válvulas de <i>spin</i> IrMn/NiFe/Nb/NiFe . . . . .	87
4.2.5	Resposta do Efeito Meissner Paramagnético nas Válvulas de <i>Spin</i> Supercondutoras . . . . .	93
4.2.6	Resultados Complementares . . . . .	100
	<b>Conclusões</b>	<b>106</b>
	<b>Outros Trabalhos</b>	<b>109</b>
	<b>Referências</b>	<b>116</b>

# Resumo

Este trabalho relata o estudo das propriedades estruturais, de transporte e magnéticas em sistema de válvulas de *spin* com camada separadora supercondutora (válvulas *top* Ta/FM/Nb/FM/IrMn ou *bottom* Ta/IrMn/FM/Nb/FM). As amostras produzidas por *magnetron sputtering*, que foram classificadas em duas famílias de válvulas de *spin* com cobalto (Co) ou permalloy (NiFe) como camadas ferromagnéticas, FM. Foram crescidas amostras com diferentes valores de espessura na camada de Nb (50 – 500 Å), focalizando principalmente no estudo do comportamento magnético das amostras que tem transição supercondutora.

O comportamento magnético das amostras mostra uma anomalia nos valores de campo coercitivo ( $H_c$ ) e de *exchange bias* ( $H_{eb}$ ). Além disso, em temperaturas menores que a temperatura crítica de transição supercondutora ( $T_c$ ), o comportamento magnético das válvulas com Co é típico de uma válvula de *spin*, atribuído ao fato de que as camadas de Co blindam a contribuição supercondutora na resposta magnética das amostras. Para as amostras com NiFe encontramos uma curva de histerese atípica em temperaturas abaixo de  $T_c$ , especialmente nas amostras com espessura acima de 300 Å. Este comportamento é similar ao apresentado pelos sistemas híbridos SC/FM, sendo observado uma trajetória no sentido oposto ao esperado para uma curva de histerese normal. Este comportamento atípico poderia estar relacionado com a natureza magnética da camada FM, a presença do efeito Meissner paramagnético (PME) na camada de Nb e a geração de vórtices causada pelo PME, porém ainda necessita ser estudado com maior detalhe.

Por outro lado estudamos a mudança induzidas nas válvulas de *spin* para diferentes materiais como *buffer*. Neste caso é apresentada uma redução da temperatura de transição supercondutora do espaçador camada Nb, quando é utilizado Nb como camada *buffer*. As curvas de histerese e os padrões de difração de raios-X seguem indicando que esta camada pode causar uma mudança nos valores do campo  $H_{eb}$  possivelmente devido a um grau maior de orientação preferencial (200) no IrMn fornecido pela camada *buffer*. A redução da  $T_c$  do espaçador Nb, nestas válvulas de *spin*, são atribuídas aos campos dispersos a partir das paredes de domínio devido ao rearranjo dos domínios nas camadas de NiFe.

# Abstract

In this work, we study the structural, electronic and magnetic properties of superconducting spin valve systems of type Ta/FM/Nb/FM/IrMn and Ta/IrMn/FM/Nb/FM (termed *top* and *bottom* respectively). We have produced two different families of samples by magnetron sputtering. For the first family cobalt (Co) serves as the ferromagnetic layer material, while the second family is based on the softer ferromagnet permalloy (NiFe). These samples were grown by magnetron sputtering with varying thickness values of the Nb layer between 50 - 500 Å.

We have discovered an anomaly in the coercitive field ( $H_c$ ) and in the exchange bias ( $H_{eb}$ ) of the pinned ferromagnetic layer. Furthermore, below the critical temperature of the superconducting transition ( $T_c$ ), the Co-based samples exhibit the classical magnetic behavior of non-superconducting spin valves, which is very likely attributed to the fact that the Co layers screen the superconducting contribution in the magnetic response. For NiFe samples, we found an unconventional hysteresis curve below  $T_c$  in samples with Nb thickness values over 300 Å. This behavior is similar to the one observed in hard superconductors and other FM/SC hybrid systems, with the crucial difference of the hysteresis loop being in the opposite direction (clock-wise instead of counter clock-wise). This atypical behavior could relate to the magnetical nature of the FM layer, the presence of paramagnetic Meissner effect (PME) in the Nb layer and the creation of vortices caused by PME.

Moreover, we study the influence of the buffer layer on the properties of superconducting spin valves. The critical temperature is significantly reduced, when the Ta buffer layer is substituted by a Nb layer. Hysteresis curves and X-rays diffraction patterns indicate that this layer causes a change in the  $H_{eb}$  values, possibly due to a higher degree of preferred orientation (200) in IrMn provided by the buffer layer. The reduction of  $T_c$  Nb spacer then can be seen as a result of the stray fields from the domain walls due to rearrangement of the domains in layers of NiFe.

# INTRODUÇÃO

O efeito de magnetorresistência gigante (GMR em inglês), baseado em um mecanismo que foi sugerido inicialmente por Mott no ano de 1936 [1], tem encontrado sua aplicação na eletrônica do dia-a-dia [2]. Em 1988 a GMR foi descoberta por dois investigadores, Albert Fert e Peter Gruenberg, que receberam conjuntamente o premio Nobel por este mesmo trabalho em 2007, pela constatação experimental deste efeito quântico; sendo esta descoberta a base para a spintrônica [3]. Desde a década do 70 as pesquisas sobre válvulas de *spin* têm sido uma fonte constante para uma nova e empolgante física [4] e durante o novo milênio estas estruturas com a camada separadora supercondutora tem recebido enorme atenção por parte da comunidade científica. Especialmente, o surgimento da supercondutividade em tripletos e a preservação da seletividade do *spin* em tais sistemas são temas debatidos atualmente [5–8].

Esta tese busca focalizar em estruturas de válvulas de *spin* que mantem o caráter supercondutor da camada de Nb. Nosso trabalho foi motivado pelos trabalhos de Zdravkov, Gu e Moraru [5, 9, 10], que usaram camadas separadoras supercondutoras finas, focalizando no comportamento elétrico das válvulas de *spin* na presença de um campo magnético paralelo ao plano das amostras. Porém, para nosso caso o enfoque foi projetado para o estudo do comportamento magnético de amostras com camadas separadoras supercondutoras com espessuras maiores ao já publicado, as quais apresentam um comportamento diferente ao encontrado em uma válvula de *spin* convencional, comportamento semelhante a um sistema híbrido supercondutor/ferromagneto (SC/FM). A fim de reproduzir este curioso comportamento e encontrar sua possível origem, decidimos crescer duas famílias de válvulas de *spin* com cobalto (Co) ou permalloy (NiFe) como camadas ferromagnéticas FM. Em contraste com os estudos anteriores de válvulas de *spin* supercondutoras, usamos valores grandes de espessura na camada supercondutora (até 500 Å), isso com o objetivo de aumentar o sinal da resposta magnética do supercondutor.

Esta tese está estruturada da seguinte maneira: no capítulo 1, apresentamos os fundamentos teóricos para as técnicas experimentais, assim como para as válvulas de *spin*, o efeito GMR e outros tópicos relacionados. Também apresentamos uma visão geral da literatura e alguns resultados experimentais, os quais estão relacionados com o trabalho. No capítulo 2, abordamos a técnica experimental usada para a produção de amostras e as respectivas técnicas de caracterização usadas neste trabalho. No capítulo 3 discutimos os detalhes de crescimento e produção das amostras.

Os resultados experimentais encontrados são apresentados e analisados no capítulo 4, para as duas famílias. Tanto a família do cobalto (Co/Nb/Co) como do permalloy (NiFe/Nb/NiFe), serão

discutidas separadamente e os resultados principais serão apresentados no final deste capítulo. Finalmente, no último capítulo, resumimos os resultados e fazemos alguns comentários finais, também como algumas observações para outros estudos planejados.

# Capítulo 1

## Aspectos Gerais

Entre os estudos de dispositivos que tem propriedades, como as magnéticas, uma grande área de pesquisa é direcionada ao estudo de materiais (e estruturas específicas) preparados na forma de filmes finos ou sistemas de multicamadas. Este tipo de dispositivos ou sistemas é estudado com maior intensidade que outros com propriedades parecidas, devido a sua grande quantidade de aplicações e simplicidade de preparação.

Os sistemas magnéticos são estruturas preparadas a partir da deposição de diferentes materiais na forma de camadas alternadas sobre uma superfície denominada de substrato. Estes sistemas se notabilizam por ter características diferentes das encontradas em materiais em forma massiva (*bulk*) devido às contribuições que determinam as propriedades de cada material em forma de camada, serem afetadas por diferentes efeitos. Os efeitos de superfície e interface, onde a razão entre a superfície e o volume é muito maior no caso de um filme, bem como o nível de rugosidade nas interfaces do sistema, pois estas estruturas dependem das condições em que foram fabricados. Além do mais, outra importante propriedade observada usualmente em filmes magnéticos é a anisotropia magnética [11], que se caracteriza pela presença de uma ou várias orientações preferenciais para a magnetização espontânea do material.

### 1.1 Crescimento de Filmes Finos

Com o desenvolvimento de sistemas de ultra-alto-vácuo mais eficientes foi possível depositar e crescer materiais sobre diferentes tipos de substratos (metálicos, isolantes ou semicondutores) com espessuras da ordem de angstroms ( $1 \text{ \AA} = 10^{-10}m$ ). A possibilidade de controlar o crescimento destas estruturas tem acompanhado o desenvolvimento de várias técnicas sofisticadas de deposição e caracterização de filmes finos. Uma das técnicas mais usadas para a fabricação de multicamadas é a pulverização catódica (*Magnetron Sputtering*) por corrente direita (DC) ou radio frequência (RF) (técnica que descreveremos na seção 2.1); esta técnica em especial permite obter taxas de deposição muito altas, o que facilita o controle de espessura das camadas durante a deposição.

Entre as propriedades estruturais mais importantes, temos que um filme fino crescido sobre um

substrato pode ter uma constante de rede diferente do respectivo material na forma *bulk* e novas fases cristalográficas podem ser formadas. Em particular, a constante de rede dos filmes finos pode ser diretamente modulada pela escolha do substrato <sup>1</sup>. Também pode-se ver que ao se depositar filmes finos estes apresentam fases estruturais diferentes das estruturas cristalinas na forma *bulk* em condições termodinamicamente similares<sup>2</sup>.

Para um sistema de multicamadas ideal as interfaces seriam planas, mas qualquer técnica de deposição envolve, de uma ou outra maneira, a formação de imperfeições estruturais nestas superfícies limites. Por exemplo, as discordâncias entre estruturas, tensão normal e lateral, relaxação, formação de defeitos pontuais, interdifusão e rugosidade, as quais mostram que a formação ideal de interfaces não é possível. Tanto a qualidade das camadas como das interfaces depende das condições de deposição, por exemplo, a temperatura do substrato, a energia de deposição dos materiais (que depende das fontes DC ou RF utilizadas), o nível de vácuo antes do processo de deposição. A pressão base, pressão interna da câmara de deposição, deve ser da ordem de  $10^{-7}$  até  $10^{-11}$  Torr e a pressão do gás durante a deposição da ordem de  $10^{-3}$  Torr, pois o processo de deposição de filmes necessita de atmosfera de gases nobres, como o argônio (Ar) ou uma mistura deste com outros gases como o oxigênio ( $O_2$ ) ou nitrogênio ( $N_2$ ).

Além dos fatores anteriores, a estrutura das moléculas depositadas sobre um substrato, junto com a quebra das conexões moleculares, a deposição de uma camada depende de energias livres relacionadas com a superfície e o material depositado, tal como a energia na interface. Consequentemente, as condições favoráveis para a formação de camadas uniformes de certo material sobre um substrato ou sobre a camada de outro material, é representada pela relação entre as energias por unidade de área  $\gamma$  (equação 1.1). Quanto maior for a energia do substrato, maior será a tendência de depositar-se de forma homogênea um filme [11]:

$$\gamma_{substrato} > \gamma_{camada} + \gamma_{interface}. \quad (1.1)$$

A partir desta relação, o processo de deposição de uma primeira camada de átomos é formada; para uma segunda camada, a morfologia é definida por diferentes condições de energia porque a nova interface é formada entre duas camadas do mesmo material. Dado que, em geral, as dimensões estruturais entre o elemento depositado e o substrato são diferentes, pois a espessura do elemento depositado aumenta, a energia da tensão de desajuste também aumenta, sendo um efeito que desfavorece a deposição de camada por camada [11]. Geralmente poderíamos considerar que existem três mecanismos principais do crescimento de filmes (figura 1.1): Primeiro, na forma de ilhas ou modo Volmer-Weber, onde pequenos *clusters* de partículas são nucleados diretamente sobre a superfície e

<sup>1</sup>Por exemplo, para as super-redes  $(Fe_2/V_5)_{50}$ ,  $(Fe_4/V_4)_{45}$  e  $(Fe_4/V_2)_{60}$ , depositadas sobre MgO(110), foram calculados os respectivos parâmetros de rede 2,93 Å, 2,90 Å e 2,89 Å, onde os subíndices dos elementos são as espessuras em número de camadas atômicas e os subíndices externos representam o número de bicamadas de cada amostra [12]. Estas constantes de rede são diferentes dos materiais puros em *bulk* Fe (2,87 Å) e V(3,03 Å)

<sup>2</sup>Como filmes finos de Co depositados sobre certos substratos apresentam uma fase *fcc*, enquanto que na forma *bulk* este elemento tem estrutura *hcp* [13]. De outro modo, as transições de fases cristalográficas também ocorrem ao nível nanométrico, por exemplo, reportaram-se transições da fase *bct* do Ru para a fase *hcp* em multicamadas Fe/Ru [14], onde a fase *bct* é formada para espessuras de Ru inferiores a 3,5 Å.

crecem até formar ilhas (figura 1.1 (a)). Isso ocorre quando os átomos do material depositado são ligados mais fortemente entre eles do que ao substrato. Segundo, na forma de camadas ou modo Frank-Van der Merwe (figura 1.1 (b)), onde os átomos são mais fortemente ligados ao substrato do que entre eles, assim, os átomos formam camadas homogêneas sobre a superfície que são fracamente ligadas ao substrato, as quais se acomodam nas camadas pré-existentes (crescimento epitaxial). Adicionalmente, existe uma forma intermediária ou mistura de camadas e ilhas também conhecida como modo Stranski-Krastanov (figura 1.1 (c)), onde depois de formar a camada inicial, ou poucas camadas, no crescimento seguinte são formadas ilhas do mesmo material [15].

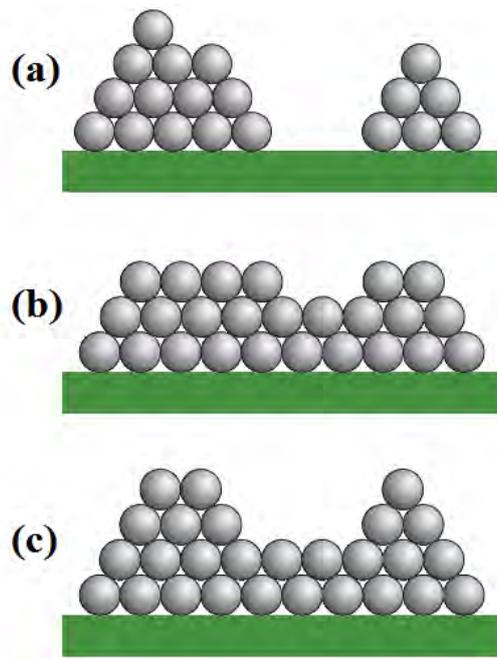


Figura 1.1: Formas de crescimento dos filmes para diferentes energias: (a) Crescimento em ilhas ou modo Volmer-Weber, (b) modo Frank-Van der Merwe ou por camadas, e (c) modo intermediário ou Stranski-Krastanov [16].

## 1.2 Magnetorresistência Gigante (GMR)

O efeito GMR consiste na grande variação da resistência elétrica de uma amostra na presença de um campo magnético externo. Ele é próprio da mecânica quântica, sendo observado principalmente em filmes finos compostos por camadas FM separadas por camadas não magnéticas (NM) condutoras, sua origem está relacionada com o transporte dependente do *spin* dos elétrons de condução. Este efeito foi descoberto independentemente no ano de 1988, pelos grupos liderados por Albert Fert (França) e Peter Grünberg (Alemanha). O trabalho inicial desta descoberta foi através do estudo de

superestruturas de (001)Fe/(001)Cr [17] sobre GaAs. Medidas de magnetorresistência foram feitas em amostras deste tipo dando como resultado uma redução da resistência durante o processo de magnetização, alcançando um valor constante ao chegar a uma saturação magnética (figura 1.2). Se temos uma magnetização no plano, é possível ter um acoplamento antiferromagnético (AFM)

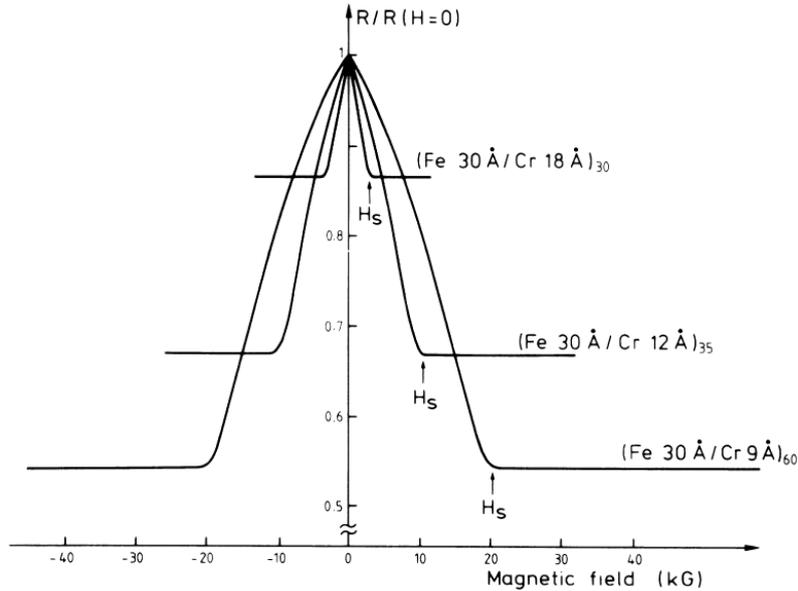


Figura 1.2: Medidas de magnetorresistência de três amostras de Fe/Cr em 4,2 K. Tanto a corrente quanto o campo magnético são aplicados paralelamente ao plano das camadas [17].

entre as camadas de Fe quando a espessura das camadas de Cr é muito pequena. Como mostra a figura 1.2 a amplitude da magnetorresistência é menor a medida que aumenta a espessura das camadas de Cr. Ao mesmo tempo, o acoplamento AFM é mais fraco e o campo de saturação diminui. Estes resultados indicam que a GMR é consequência da orientação das camadas de Fe, pelo campo magnético aplicado e o espalhamento dependente do *spin* no fluxo de elétrons através das camadas do sistema [17]. Esta descoberta incentivou o desenvolvimento de novos dispositivos eletrônicos de menor tamanho e maior sensibilidade (cabeças leitoras para discos rígidos, sensores de campo magnético, memórias magnéticas MRAM, entre outros).

Quantitativamente, podemos representar a magnetorresistência pelo seguinte valor [18]:

$$MR(\%) = \frac{R(0) - R(H)}{R(H)} \times 100. \quad (1.2)$$

Onde  $R(H)$  é a resistência da amostra influenciada pelo campo magnético aplicado  $H$  e  $R(0)$  corresponde à resistência em campo zero.

### 1.2.1 Espalhamento Dependente de *Spin*

Uma descrição quantitativa simples deste efeito é fornecida pelo modelo que representa cada camada como uma resistência com relação ao *spin* do fluxo de elétrons (modelo de duas correntes) [19]. O valor da resistência para cada *spin*, dependendo da configuração magnética das camadas FM, pode ser maior ou menor. Portanto, para a configuração P o circuito equivalente terá duas resistências pequenas por um laço e duas maiores pelo outro. Para a configuração AP os laços do circuito contem uma resistência pequena e outra maior, indicando o mesmo valor para os dois fluxos de *spin*. Cada resistência equivalente de cada configuração é representada como  $R_P$  para a configuração P e  $R_{AP}$  para a configuração AP.

O comportamento do *spin* de condução em materiais ferromagnéticos (metais ou ligas metálicas) foi sugerida por Mott [1] antes de ser demonstrado experimentalmente e quantitativamente descrito no final dos anos sessenta por Fert e Campbell [19] para as séries com permalloy. Resultados semelhantes poderiam ser encontrados em vários outros sistemas [20–22]. Os resultados experimentais podem ser considerados no “modelo de duas correntes” da condução em metais FM [19, 22]. Neste modelo, a resistividade de um condutor FM é expressada como:

$$\rho = \frac{\rho_{\uparrow}\rho_{\downarrow} + \rho_{\uparrow\downarrow}(\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow})}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow} + 4\rho_{\uparrow\downarrow}}, \quad (1.3)$$

com  $\rho_{\uparrow}$  e  $\rho_{\downarrow}$  sendo as resistividades dos fluxos de *spin*  $\uparrow$  e  $\downarrow$ .  $\rho_{\uparrow\downarrow}$  é o termo da resistividade do fluxo de *spins* misto, representando a transferência do momento entre os dois fluxos pela dispersão *spin-flip*. No limite de baixa temperatura ( $T \ll T_C$ )<sup>3</sup> do modelo das duas correntes, quando o espalhamento de *spin-flip* dos elétrons de condução feito pelos mágnons é congelado, a taxa de mistura de *spin* é muito menor do que a taxa de relaxação do momento e a resistividade do ferromagneto é descrita como:

$$\rho = \frac{\rho_{\uparrow}\rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}}. \quad (1.4)$$

Esta expressão corresponde à situação com a condução em paralelo por dois fluxos independentes. Surpreendentemente esta versão simplificada do modelo de duas correntes tem sido geralmente adotada nas teorias de GMR e apenas alguns modelos levam em conta o termo de *spins* misturados. A assimetria entre os dois fluxos é caracterizada por coeficientes de assimetria do *spin*:

$$\alpha = \frac{\rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow}} \quad (1.5)$$

ou alternativamente

$$\beta = \frac{\rho_{\downarrow} - \rho_{\uparrow}}{\rho_{\downarrow} + \rho_{\uparrow}} = \frac{\alpha - 1}{\alpha + 1}. \quad (1.6)$$

---

<sup>3</sup>Abaixo da temperatura de Curie  $T_C$ .

Existem várias origens para a diferença entre  $\rho_\uparrow$  e  $\rho_\downarrow$ . Esquemáticamente, a resistividade  $\rho_\sigma$  do *spin* dos elétrons  $\sigma$  pode ser escrita como uma função do número de *spins*  $n_\sigma$ , a massa efetiva  $m_\sigma$ , o tempo de relaxação  $\tau_\sigma$ , as densidades dos estados (*DOS*) no nível de Fermi  $n_\sigma(E_F)$ , a qual é representada da seguinte maneira

$$\rho_\sigma = \frac{m_\sigma}{n_\sigma e^2 \tau_\sigma}. \quad (1.7)$$

Onde  $e$  representa a carga do elétron.

Para um determinado tipo de potencial de dispersão (sem *spin-flip*) caracterizado pelos elementos da matriz  $V_\sigma$  e na aproximação de Born, temos:

$$\tau_\sigma^{-1} \sim |V_\sigma|^2 n_\sigma(E_F). \quad (1.8)$$

Existem origens intrínsecas da dependência de *spin* de  $\rho_\sigma$  que estão relacionados com a dependência do *spin* de  $n_\sigma$ ,  $m_\sigma$  ou  $n_\sigma(E_F)$ . Em metais de transição, a mais importante destas origens intrínsecas vem da proporcionalidade da taxa de relaxamento para a *DOS*,  $n_\sigma(E_F)$ , na equação 1.8.

Em uma primeira aproximação, pode-se dizer que a maior parte da corrente é transportada por elétrons leves de carácter  $s$  e estes são espalhados mais fortemente quando são dispersos nos estados pesados da banda  $d$ , para o qual a *DOS* é grande. Em materiais como Ni, Co e ligas metálicas como o NiFe ou CoFe, quando a banda  $d_\uparrow$  está abaixo do nível de Fermi, neste caso  $n_{d_\uparrow}(E_F) = 0$ . A partir da equação 1.8 com  $n_{d_\sigma}(E_F) \neq 0$  apenas para os *spins*  $\downarrow$ , somente existe uma dispersão  $s - d$ , de modo que há uma tendência intrínseca geral para dispersões mais fortes e resistividades maiores no fluxo de *spin*  $\downarrow$ . No entanto, as maiores assimetrias entre  $\rho_\downarrow$  e  $\rho_\uparrow$  podem ser induzidas por efeitos extrínsecos, em particular pela dopagem com impurezas que apresentam um espalhamento *spin* dependente forte na secção transversal da amostra [19–22].

Em baixas temperaturas, o espalhamento dos elétrons depende da orientação das camadas FM, onde cada fluxo de elétrons pode passar através delas, uma vez que poucos eventos de espalhamento afetem o transporte dos elétrons com determinado *spin* (modelo de duas correntes). Para uma configuração P, os espalhamentos são assimétricos e as resistividades devidas aos elétrons com *spin*  $\uparrow$  e  $\downarrow$  podem ser diferentes também. Neste caso, os elétrons com *spin*  $\uparrow$  são fortemente espalhados, enquanto que os elétrons com *spin*  $\downarrow$  sofrem um espalhamento quase desprezível. Portanto, a taxa de espalhamentos dependente do *spin* resulta da diferença na densidade de estados livres no nível Fermi, nos quais os elétrons podem ser espalhados [23].

### 1.3 Efeito *Exchange Bias*

Quando um sistema com interfaces FM / AFM é resfriado abaixo da temperatura de Néel ( $T_N$ ) do AFM, uma anisotropia é induzida nos materiais FM do sistema, onde a  $T_C$  (temperatura de Curie) do FM é maior do que a  $T_N$ . Esta anisotropia induzida é conhecida como efeito *Exchange bias*, o qual é associado com a anisotropia de troca criada na interface FM-AFM [24]. A assinatura deste efeito é o deslocamento da curva de histerese em relação ao eixo do campo magnético. O acoplamento na

interface pode ser observado resfriando o par AFM-FM na presença de um campo magnético estático a partir de uma temperatura acima de  $T_N$ , mas abaixo de  $T_C$  ( $T_N < T < T_C$ ). Para temperaturas  $T < T_N$ , como mostra a figura 1.3, a curva de histerese é deslocada ao longo do eixo do campo magnético, geralmente em direção oposta (negativa) ao campo magnético aplicado, isto é, o valor absoluto do campo coercivo para o campo aplicado (como para o campo aplicado em direção oposta) é diferente. Este deslocamento da curva de histerese é conhecido como campo de *Exchange bias* ( $H_{eb}$ ). A histerese geralmente tem uma maior coercividade,  $H_C$ . Estes dois efeitos desaparecem em temperaturas próximas a  $T_N$ .

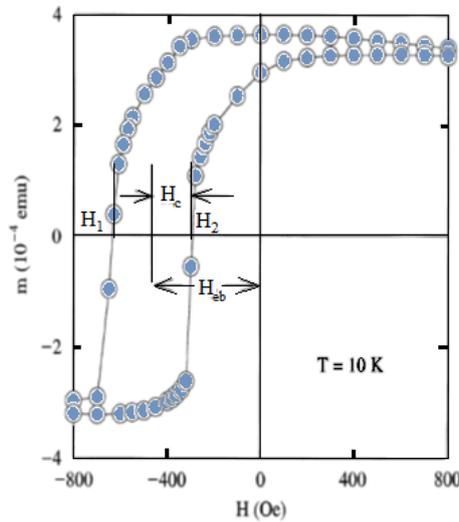


Figura 1.3: Curva de histerese da bicamada  $FeF_2/Fe$  em  $T = 10$  K. Tanto os valores experimentais de campo  $H_1$  e  $H_2$  quanto os de campo coercitivo  $H_C$  e campo de *Exchange bias*  $H_{eb}$  são indicados na mesma figura (da ref. [24]).

Para entender este efeito, podemos considerar a interação entre os momentos magnéticos de uma interface AFM/FM (figura 1.4). Quando aplicamos um campo no intervalo de temperaturas  $T_N < T < T_C$ , os momentos da camada FM ficam orientados na direção do campo aplicado, enquanto que na camada AFM mantêm-se aleatórios (figura 1.4(i)).

Ao resfriar a bicamada abaixo de  $T_N$  na presença do campo aplicado, os momentos da camada AFM próximos à camada FM ficam alinhados na mesma direção dos momentos ferromagnéticos, devido à interação na interface, os momentos internos na camada AFM seguem uma ordem anti-ferromagnética, de modo que produz uma magnetização total igual a zero na camada AFM (figura 1.4(ii)). Quando o campo aplicado muda de direção, os momentos FM começam a girar na direção do campo. No entanto, para uma anisotropia AFM suficientemente grande, os momentos AFM permanecem inalterados. Uma vez que os momentos AFM exercem um torque “puxando” os momentos FM a sua direção original, este efeito é descrito como uma anisotropia unidirecional (figura 1.4(iii)). Para que o campo consiga mudar a direção dos momentos FM, este deve ter uma intensidade maior,

pois o campo precisa superar o torque exercido pela camada AFM. Assim, aplicando um campo com intensidade suficientemente grande para superar este torque, os momentos FM giram na direção do campo (figura 1.4(iv)). Quando o campo magnético muda para direção original, os momentos FM começam a girar de novo em uma intensidade de campo menor, devido à interação com os momentos AFM, os quais exercem torque na mesma direção do campo (figura 1.4(v)).

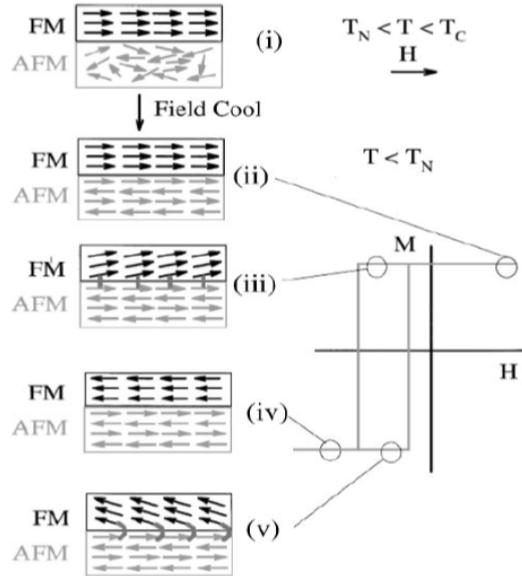


Figura 1.4: Diagrama esquemático que ilustra a configuração dos momentos magnéticos em uma bicamada FM/AFM, mostrando os diferentes estágios destes momentos (i)-(v) em uma curva de histerese da bicamada com o efeito *Exchange bias* [24].

O sistema se comporta como se tivesse um campo de polarização adicional, por conseguinte, a curva de histerese fica deslocada no eixo do campo magnético, ou seja, com o efeito *Exchange bias*. Entretanto, este modelo simples pode ser usado para uma compreensão básica do efeito, pois ele desconsidera parâmetros importantes como a anisotropia, rugosidade nas interfaces, configuração dos momentos (ou *spins*) e domínios magnéticos que podem influir neste efeito.

Para analisar este efeito, em muitos casos precisamos quantificar os campos  $H_{eb}$  e  $H_c$ . Geralmente, se consideram os valores de campo que apresentam magnetização nula ( $m = 0$ ) nas curvas de histerese, como mostra a figura 1.3, estes valores de campo são indicados como  $H_1$  e  $H_2$ , com estes valores podemos quantificar tanto  $H_{eb}$  como  $H_c$  a partir das seguintes equações [25]:

$$H_c = \frac{1}{2} (H_2 - H_1), \quad (1.9)$$

$$H_{eb} = \frac{1}{2} |H_1 + H_2|. \quad (1.10)$$

Em certos casos, as curvas de histerese não são simétricas devido à configuração das amostras, como nas válvulas de *spin* que discutiremos depois, portanto os valores  $H_1$  e  $H_2$  podem estar localizados

em valores de  $m \neq 0$ . Então estes valores podem ser obtidos a partir da mudança do centro da curva de histerese em relação ao eixo de campo e na metade da altura de cada laço separado [25,26]. Outro método usado para obter os valores de  $H_1$  e  $H_2$  é a partir da primeira derivada de cada laço da curva de histerese; este método tende a ser mais confiável, pois mostra a mudança de valor de cada laço como um pico, o qual pode ter uma intensidade maior ou menor dependendo da inclinação do laço [5], este método será o utilizado na análise das amostras como é mostrado no capítulo de análise de resultados (capítulo 4).

## 1.4 Válvulas de *Spin*

A válvula de *spin* é um sistema que é composto por duas (ou mais) camadas ferromagnéticas, separadas por uma camada de material condutor não magnético, cuja resistência elétrica pode mudar dependendo do alinhamento relativo da magnetização das camadas ferromagnéticas devido ao campo magnético aplicado. No caso mais simples, a válvula de *spin* está composta por duas camadas FM separadas por uma camada não magnética (NM). Uma das camadas FM está em contato com uma camada anti-ferromagnética (AFM), a qual prende a magnetização da camada adjacente através do efeito *exchange bias*, chamada assim de camada presa ou camada de referência. A outra camada FM é conhecida como camada livre. Dependendo da ordem da deposição das camadas, as válvulas *spin* podem ser classificadas como *Bottom* (Figura 1.5(a)) e *Top* (figura 1.5(b)), onde a classificação é definida pela ordem de deposição das quatro camadas (começando com a camada AFM ou a camada livre).

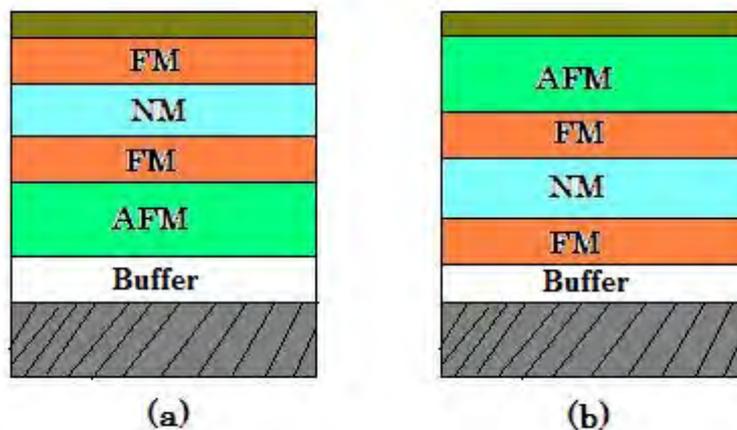


Figura 1.5: Representação esquemática das válvulas de *spin*: tipo (a) *Bottom* e (b) *Top*. A última camada é uma camada de cobertura.

Para entender como funciona a válvula de *spin*, é necessário considerar que os elétrons tem *spin*. Assumindo que aplicamos uma corrente de elétrons com igual número de *spins* para cima (*spin*↑) como para baixo (*spin*↓), podemos observar como o fluxo de *spins* pode ser controlado a partir da interação com as camadas FM por causa do efeito de magnetorresistência gigante, que será explicado abaixo. Quando aplicamos um campo magnético, os momentos destas camadas ficam alinhados dependendo da orientação e da intensidade do campo. Neste caso, cada camada FM atua como um filtro para os *spin* dos elétrons, gerando assim uma resistência do fluxo de elétrons aplicado sobre o sistema. Como mostra a figura 1.6(a), quando as camadas FM tem uma configuração paralela (P), os elétrons com *spin* ↓ podem passar através do sistema sem quase ser espalhados, o que implica assim uma resistência baixa para este fluxo. Por outro lado, os elétrons com *spin* ↑ são espalhados pela interação própria entre os momentos magnéticos das camadas FM e os *spin* dos elétrons. No caso contrário (figura 1.6(b)), o sistema está configurado antiparalelo (AP) e ambos tipos de elétrons serão submetidos a colisões em uma camada FM ou na outra, dando origem a uma resistência alta. A figura 1.6 também mostra como a camada presa tem sua magnetização fixa, enquanto que a magnetização da camada livre pode mudar de orientação. A mudança de orientação da camada livre atua como um tipo de válvula, que “abre” (na configuração P) ou “fecha” (na configuração AP) o fluxo de elétrons, para um *spin* determinado [27].

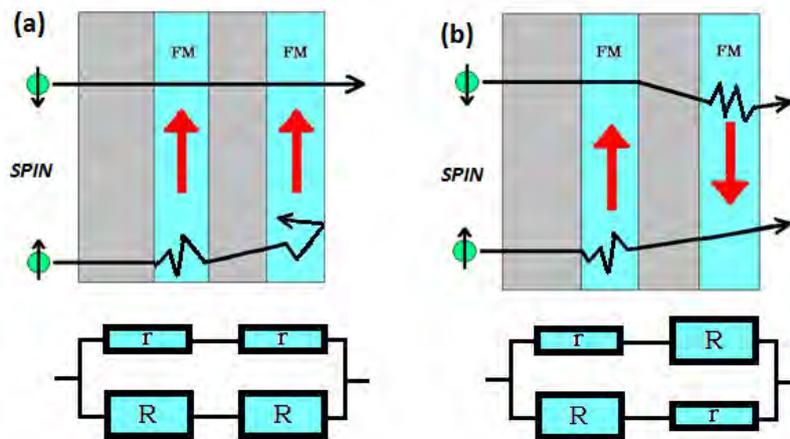


Figura 1.6: Representação esquemática do funcionamento básico de uma válvula de *spin*. Onde podemos observar as duas configurações e sua respectiva representação de resistências: (a) A configuração P que mostra um estado de baixa resistência, o fluxo de elétrons com *spin* ↓ passa quase sem ser espalhado. (b) Para a configuração AP, o fluxo de elétrons é completamente espalhado, gerando uma resistência alta [27].

Para uma válvula de *spin*, o comportamento magnético implica em uma curva de histerese por dois laços sobrepostos, com forma semelhante a uma escada (figura 1.7). A parte da curva de histerese que não está deslocada corresponde à camada FM livre. A camada FM presa apresenta o efeito *Exchange*

*bias* devido a interação com a camada AFM; este efeito é mostrado como um deslocamento da parte inferior da curva de histerese. Quando o sistema é saturado pelo campo magnético aplicado, em uma orientação positiva, as camadas FM são orientadas de tal forma que tem uma configuração paralela. Ao diminuir o campo, a camada presa começa a reverter sua orientação lentamente. Com o campo próximo de zero, a camada livre reverte sua orientação subitamente, enquanto que a camada presa ainda está no início da reversão. Nesse mesmo momento as camadas FM têm uma configuração antiparalela. A camada presa completa sua reversão depois de certo valor de campo no sentido negativo. Finalmente, quando o sistema está saturado no sentido negativo do campo magnético as camadas FM tem novamente uma configuração paralela [10].

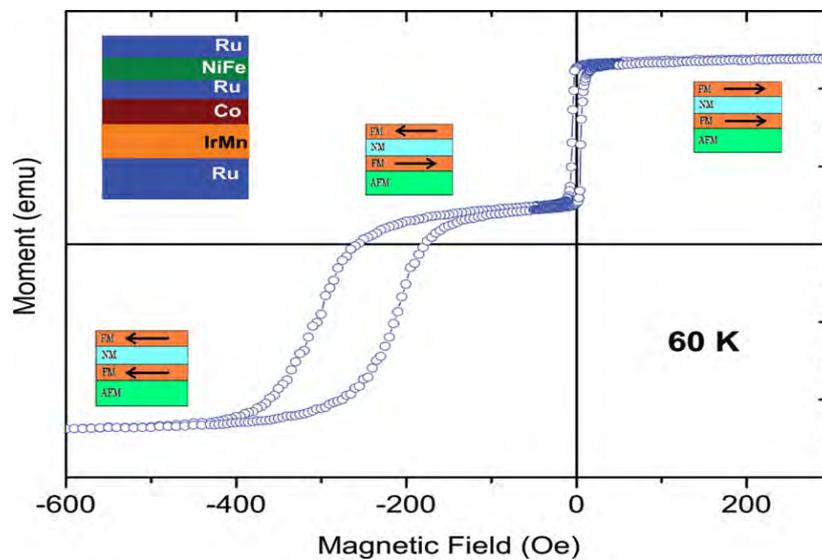


Figura 1.7: Resposta magnética de uma válvula de *spin*, onde se representa a configuração das camadas FM com respeito ao percurso da curva de histerese em função da mudança do campo magnético aplicado Ref. [28].

### 1.4.1 Acoplamento Casca de Laranja (*orange-peel*) de Néel

Como foi discutido anteriormente, nas válvulas de *spin* o acoplamento das camadas FM depende fortemente da espessura da camada separadora; esta dependência pode ser explicada pelo efeito Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) [29]. Entretanto, este acoplamento não é considerado neste trabalho, pois as espessuras das camadas separadoras são relativamente grandes [28]. Outros efeitos que podem influenciar o acoplamento são o efeito *pinhole* FM<sup>4</sup> e o acoplamento casca de laranja de Néel. Discutiremos apenas esse último efeito pois ele é devido à rugosidade das interfaces entre as camadas, que pode afetar as nossas amostras.

Duas camadas ferromagnéticas que fazem parte do mesmo sistema de multicamadas, mostram geralmente um acoplamento efetivo. Néel previu que uma interface rugosa entre duas camadas levaria a presença de momentos magnéticos não compensados que acoplariam estas camadas através de um campo dipolar [30].

O modelo inicial proposto por Néel [31], descreve a interação magnetostática entre duas camadas FM de espessura infinita (com magnetização  $M_1$  e  $M_2$  e constante permeabilidade magnética  $\mu_0$ ), como é mostrado na figura 1.8(a), separadas por uma camada NM de espessura  $t$  correlacionada com uma interface de ondulação com amplitude  $h$  e comprimento de onda  $\lambda$ . A energia de acoplamento inter-camadas  $J$  é escrita como:

$$J = \frac{\pi^2 h^2 \mu_0 M_1 M_2}{(\sqrt{2}\lambda) \exp(-2\pi\sqrt{2}t/\lambda)}. \quad (1.11)$$

Este modelo pode descrever razoavelmente a dependência da espessura da camada separadora. A ondulação considerada é associada com o desenvolvimento de estruturas granulares, o qual faz a ondulação relevante para o modelo [32]. Para este modelo o campo de *off-set* ( $H_o$ ) da camada livre FM2 (com espessura  $t_2$ ), também pode ser representado com o campo de anisotropia de troca dado por :

$$H_o = \frac{J}{\mu_0 M_2 t_2}. \quad (1.12)$$

Para uma análise com maior precisão e realista, podemos considerar que as camadas FM tem espessura finita. De fato, os polos magnéticos criados nas superfícies externas das camadas FM resultam em interações adicionais, as quais devemos considerar. Por outro lado, partindo do modelo inicial independente das dimensões das amostras, consideramos certos parâmetros como: A rugosidade modelada como uma estrutura de ondulação com amplitude  $h$  e comprimento de onda  $\lambda$ , a magnetização da camada presa  $M_{FM1}$ , a espessura da camada livre  $t_{FM2}$  e da camada separadora  $t_{NM}$  [33].

A fim de ter a espessura finita das camadas FM em uma válvula de *spin*, é importante considerar a morfologia associada com a estrutura granular em mais detalhe. Diante disso, para os dois tipos de válvulas estudados neste trabalho (*top* e *bottom*), usando as equações 1.11 e 1.12, podemos definir a

---

<sup>4</sup>Acoplamento entre camadas FM separadas por uma camada não magnética através de buracos, os quais podem ser explicados por um fenômeno de troca indireto produzido pela polarização de elétrons de condução da camada separadora.

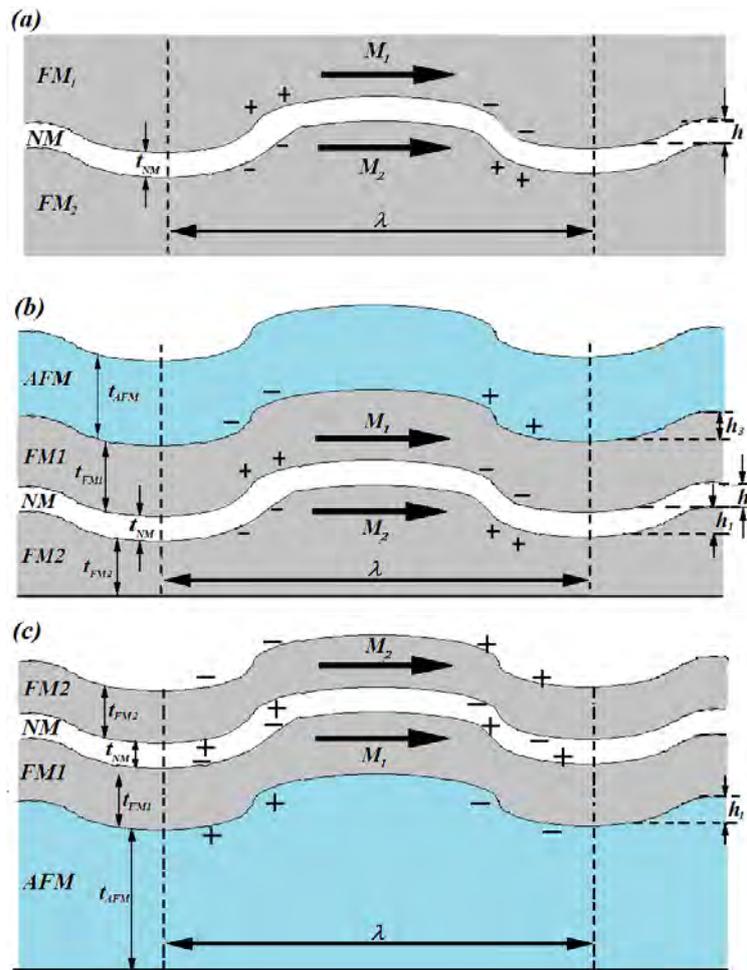


Figura 1.8: Representação esquemática dos três casos de interação magnetostática. (a) Modelo inicial de Néel com camadas FM com espessura infinita. (b) Estrutura colunar com ondulação acumulativa (válvula de *spin top*). (c) Estrutura colunar com ondulação isolante (válvula de *spin bottom*) [32].

magnitude do acoplamento de Néel como [33, 34]:

$$H_o = \frac{\pi^2}{\sqrt{2}} \left( \frac{h^2}{\lambda t_2} \right) M_1 \exp \left( \frac{2\pi\sqrt{2}t}{\lambda} \right). \quad (1.13)$$

Para as válvulas de *spin top*, as dimensões do grão no plano aumentam excessivamente durante os estágios iniciais da deposição das camadas. Para filmes com maior espessura, o volume do grão aumenta lentamente com a espessura da camada, para que finalmente as camadas desenvolvam uma estrutura colunar; isto está relacionado com um aumento do nível de ondulação.

Assumindo que a camada livre no início desenvolve uma estrutura granular (figura 1.8(b)), as interfaces mostram uma ondulação com comprimento de onda  $\lambda$  e as respectivas amplitudes  $h_1$  (para a superfície superior de FM2),  $h_2$  (superfície inferior de FM1) e a amplitude  $h_3$  (parte superior de FM1). Se consideramos dois termos de acoplamento FM, estes estão indicados entre os polos na interface superior da camada FM2 e os polos na interface inferior da camada FM1. A interação total pode ser escrita como uma soma algébrica de duas interações [32]:

$$H_o = \frac{\pi^2 h_1 h_2 M_1}{\sqrt{2} \lambda t_2} \left[ 1 - \frac{h_3}{h_2} \exp \left( \frac{-2\pi\sqrt{2}t_1}{\lambda} \right) \right] \times \exp \left( \frac{-2\pi\sqrt{2}t_{NM}}{\lambda} \right). \quad (1.14)$$

Comparando as equações 1.11, 1.12 e 1.14, os seguintes pontos merecem atenção: Na equação 1.14 se pode ver uma ligeira dependência da espessura da camada FM1, o que ainda não foi reportado e essencialmente tem a mesma dependência  $t_2$  e  $t_{NM}$  nos dois modelos, entretanto, o valor de  $h$  tem de ser ligeiramente ajustado [32].

Para o caso das válvulas de *spin bottom*, figura 1.8(c), consideramos quatro conjuntos de polos, e portanto, duas interações ferromagnéticas e duas antiferromagnéticas. A primeira interação FM é devida aos polos dos dois lados da camada NM, equivalente ao modelo original de Néel. A segunda interação FM é entre os polos nas duas interfaces exteriores das camadas FM. A primeira interação AFM atua entre os polos das interfaces inferiores de ambas camadas FM. E finalmente, a segunda interação antiferromagnética ocorre entre os polos da interface superior das duas camadas FM. Neste caso, podemos escrever o campo da seguinte maneira:

$$H_o = \frac{\pi^2 h^2 M_1}{\sqrt{2} \lambda t_2} \left[ 1 - \exp \left( \frac{-2\pi\sqrt{2}t_1}{\lambda} \right) \right] \times \left[ 1 - \exp \left( \frac{-2\pi\sqrt{2}t_{NM}}{\lambda} \right) \right] \exp \left( \frac{-2\pi\sqrt{2}t_{NM}}{\lambda} \right), \quad (1.15)$$

onde a dependência da camada FM2 também muda [32]. Numa abordagem mais simples, em algumas pesquisas onde se estuda este efeito se assume que as rugosidades das camadas são iguais ( $h_1 = h_2 = h_3$ ), o que depende das condições de deposição de cada amostra. Portanto, se usa geralmente a equação 1.13 para obter a magnitude do campo  $H_o$  ou intensidade do acoplamento de Néel [33, 34].

## 1.5 Supercondutividade

As principais propriedades de um material supercondutor (SC) são: 1) A capacidade característica de conduzir correntes elétricas sem apresentar resistência abaixo de uma temperatura de transição supercondutora  $T_c$ ; 2) a expulsão do fluxo magnético do interior do material quando o mesmo é resfriado na presença de um campo magnético apresentado o comportamento diamagnético no material (efeito *Meissner*). Destacamos que esta última propriedade é a mais relevante para o estado supercondutor como algo novo do ponto de vista físico [35].

A partir da segunda propriedade, podemos classificar os supercondutores em dois tipos, I e II. Os supercondutores de tipo I se caracterizam por apresentar um comportamento diamagnético perfeito, o qual o campo magnético é expulso do interior do material abaixo de um valor de campo magnético crítico  $H_c$ . Entretanto, ao aumentar a intensidade do campo a valores acima de  $H_c$ , o material torna-se normal. O termo supercondutor de tipo II foi introduzido por Abrikosov, o qual, propõe que para certos supercondutores o fluxo magnético consegue penetrar no material mantendo seu estado supercondutor [36]. Neste caso, para este tipo de supercondutores existem dois valores de campo crítico  $H_{c1}$  e  $H_{c2}$ . Quando aplicamos um campo abaixo de  $H_{c1}$ , o supercondutor apresenta um comportamento diamagnético perfeito (como os supercondutores tipo I). Para valores de campo  $H > H_{c1}$ , o fluxo magnético penetra no material em forma de vórtices até um valor  $H_{c2}$ , no qual, ao aumentar o campo acima deste valor o material passa ao estado normal. A maioria de elementos supercondutores são do tipo I, com uma exceção. O nióbio (Nb) é o único elemento supercondutor que é de tipo II. Como podemos observar na figura 1.9, a resposta magnética do Nb aumenta com a diminuição da temperatura. Estes valores podem mudar com a quantidade de impurezas presentes no Nb, que podem gerar uma redução no  $H_{c1}$  [37].

A dificuldade na preparação de alguns filmes supercondutores do tipo II (ligas metálicas, YBCO entre outros) surge do fato de que alguns materiais são compostos de um ou mais elementos quimicamente ativos, com o qual, possivelmente a deposição não seria homogênea. Em tal caso, uma deposição satisfatória poderia ser conseguida alcançando níveis de vácuo maiores do que  $10^{-9}$  Torr [38]. O Nb não tem esse tipo de complicação, o que faz dele o elemento mais usado na pesquisa de supercondutores de tipo II.

Várias pesquisas mostraram que o Nb, além de apresentar um comportamento de supercondutor de tipo II, ao ser preparado como um filme fino, sua  $T_c$  depende tanto da espessura como do substrato sobre o qual está sendo depositado [39–41]. Observamos que estes valores estão abaixo da  $T_c$  do Nb *bulk* (9,5 K), porém aumentam com incremento da espessura. Por outro lado, o incremento da espessura também influi no campo crítico  $B_{c2}$ , o qual diminui quando a espessura das camadas aumenta [39].

Para descrever a supercondutividade partimos da existência dos pares de Cooper, os quais são dois elétrons ligados de certa maneira a baixas temperaturas. Descrito inicialmente por Leon Cooper em 1956 [42], ao mostrar que uma atração arbitrariamente pequena entre elétrons num metal pode causar um estado de paridade tendo uma energia mais baixa do que a energia de Fermi, o que implica que o par de elétrons está ligado. Geralmente, esta atração é causada pela interação dos elétrons com os fônons da rede cristalina. Este estado forma parte da teoria BSC (desenvolvida por John

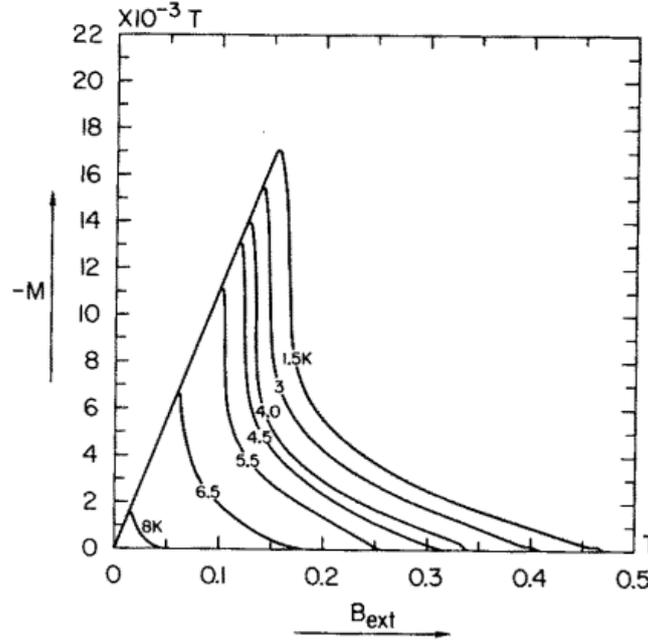


Figura 1.9: Curvas de magnetização do Nb com uma concentração de 700 ppm de tântalo (Ta), para diferentes temperaturas [37].

Bardeen, John Schrieffer e Leon Cooper), o qual explica o estado supercondutor dos materiais com as propriedades antes mencionadas.

Outra teoria que explica a supercondutividade, junto com a BSC, é a teoria de Ginzburg-Landau, desenvolvida por Vitaly Ginzburg e Lev Landau em 1959. A abordagem teórica do estado supercondutor está inteiramente focada no comportamento dos elétrons ao invés do comportamento das excitações, sendo possível estudar materiais SC não convencionais (que não podem ser estudados com a teoria BSC) [35].

Dois parâmetros importantes para descrever a supercondutividade a partir desta teoria de Ginzburg-Landau são o comprimento de coerência  $\xi$  e a profundidade de penetração  $\lambda$ . O parâmetro  $\xi$  indica a magnitude das flutuações termodinâmicas no estado supercondutor, que em muitos casos é considerado como o espaçamento dos elétrons em um par de Cooper (teoria BSC); ele é dado pelas expressões

$$\xi = \begin{cases} \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m|\alpha|}} & \text{Teoria de Ginzburg-Landau.} \\ \frac{\hbar v_f}{\pi\Delta} & \text{Teoria BCS.} \end{cases}$$

Nestas expressões,  $\hbar$  é a constante de Plank,  $m$  corresponde a massa efetiva do par de Cooper (duas vezes a masa do elétron),  $\alpha$  é considerado um parâmetro aproximado dependente da temperatura  $a(T) \approx a_0(T - T_c)$ ,  $v_f$  é a velocidade de Fermi e  $\Delta$  é o *gap* de energia supercondutora [35].

Por outro lado,  $\lambda$  está definido como a profundidade máxima que o campo magnético pode penetrar em uma amostra em estado supercondutor, dada pela seguinte expressão [35]:

$$\lambda = \sqrt{\frac{m}{4\mu_0 e^2 \psi_0^2}}. \quad (1.16)$$

Nesta expressão,  $\psi_0$  é o valor de equilíbrio do parâmetro de ordem, na ausência de um campo electromagnético. Com estes parâmetros, podemos calcular o parâmetro de Ginzburg-Landau a partir da razão  $\kappa = \lambda/\xi$ . Este parâmetro  $\kappa$  é a chave para distinguir entre um SC tipo I e um tipo II, como foi proposto por Abrikosov [36], levando em conta as seguintes condições:

- Se  $\kappa < 1/\sqrt{2}$ , a energia superficial do SC é positiva, portanto o SC será de tipo I (especialmente para  $\kappa \ll 1$ );
- Se  $\kappa > 1/\sqrt{2}$ , a energia superficial do SC é negativa e o SC é de tipo II (especialmente se  $\kappa \gg 1$ ).

### 1.5.1 Vórtices

Os supercondutores que apresentam  $\lambda$  maior do que  $\xi$ , têm condições energeticamente favoráveis para a formação de paredes de domínio entre o supercondutor e as regiões normais [35]. Nos supercondutores tipo II, ao aplicar um campo magnético, a energia livre pode reduzir-se fazendo com que os domínios do material normal que contem fluxos presos formem barreiras com baixa energia, geradas entre um centro do material normal e o supercondutor que está em contato. Quando o campo ultrapassa o valor de  $B_{c1}$ , o fluxo pode penetrar em unidades quantizadas formando domínios cilíndricos simétricos também chamados vórtices [36].

Quando aplicamos um campo no intervalo  $B_{c1} < B_{ap} < B_{c2}$ , o fluxo penetra através dos vórtices, os quais servem para confinar o fluxo que penetra. O campo mais alto se encontra no centro do vórtice, este tem um raio equivalente a  $\xi$  e está rodeado por uma região maior de raio  $\lambda$ , onde estão presentes tanto o fluxo magnético como as correntes de blindagem que circulam ao redor do centro [36]. Pois bem, o fluxo que passa através do vórtice pode ser expresso pela seguinte equação:

$$\phi_0 n = \int \vec{B} \cdot d\vec{S} + \frac{\mu_0 m^*}{e^* 2} \int \frac{\vec{J} \cdot d\vec{l}}{|\phi|^2}. \quad (1.17)$$

Nesta equação,  $n$  é o número de vórtices (ou centros) delimitado pelas integrais,  $m^*$  e  $e^*$  representam a massa e a carga do par de Cooper ( $m^* = 2m$  e  $e^* = \pm 2e$ ). Para um vórtice isolado  $n = 1$ , porque é mais favorável para dois ou mais quanta de fluxo formar vórtices separados do que coexistir todos em um mesmo vórtice. Tomando a área da seção transversal  $\vec{S}$  muito grande, podemos dizer que,

$$\phi_0 n = \int \vec{B} \cdot d\vec{S}. \quad (1.18)$$

$$(1.19)$$

Uma vez que o campo magnético na amostra se limita aos vórtices, o fluxo total é  $\phi_0$  vezes o número de vórtices por unidade de área  $N_A$ , portanto o campo interno médio  $B_{in}$  é dado por:

$$\phi_0 N_A = B_{in}. \quad (1.20)$$

Como a interação entre os vórtices é repulsiva, estes assumem um arranjo de rede que os mantém separados, estas redes podem ser hexagonais (ou em certos casos quadradas) quando sua densidade é consideravelmente grande, figura 1.10(a).

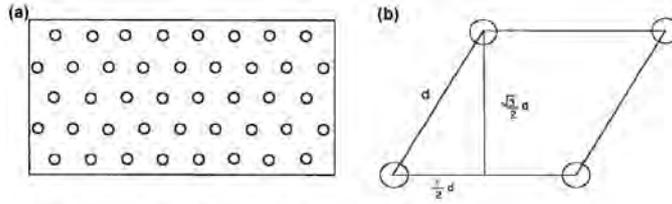


Figura 1.10: (a) Rede hexagonal de vórtices sobre uma área de seção transversal definida para uma amostra. (b) Cella unitária de vórtices para uma rede hexagonal, onde  $d$  é o comprimento de separação entre os vórtices [35].

Como mostra a figura 1.10(b), cada vórtice ocupa um área de  $(\sqrt{3}/2)d^2$  na cela unitária; portanto, da equação 1.20 temos que:

$$B_{in} = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\phi_0 A_T}{d^2}, \quad (1.21)$$

que implica em

$$d = \left( \frac{2}{\sqrt{3}} \right)^{1/2} \sqrt{\frac{\phi_0}{B_{in}}}. \quad (1.22)$$

### 1.5.2 Efeito Meissner Paramagnético

Como sabemos, o efeito Meissner é caracterizado por exibir um comportamento semelhante ao diamagnético quando o material SC é resfriado abaixo de  $T_c$  na presença de um campo magnético aplicado. Porém, alguns supercondutores não exibem este comportamento. Neste caso, a resposta destes materiais é paramagnética e este efeito é conhecido como efeito Meissner paramagnético (PME - usando a sigle em inglês). O PME consiste no surgimento de uma magnetização positiva sob resfriamento em campos magnéticos fracos ( $H \geq 1$  Oe). Quando o campo aumenta, a magnetização também, mas ao alcançar valores de saturação começa a diminuir. Por causa de determinados sentidos na orientação do campo, a magnetização muda de sinal e torna-se diamagnética [43].

Para campos magnéticos fixos, a magnetização aumenta com a diminuição da temperatura, alcançando o ponto de saturação em temperaturas menores, figura 1.11. No caso do resfriamento

abaixo da  $T_c$  com campo magnético zero ( $H = 0$ ) e a seguir um campo magnético fraco (ZFC), a magnetização torna-se diamagnética. A magnetização se mantém congelada por um longo prazo se o campo é removido em temperaturas menores. Neste caso, a magnetização residual diminui com o incremento da temperatura e a magnetização positiva aumenta com um incremento no tempo da amostra na presença de um campo magnético [43].

Este efeito tem sido observado em vários materiais SC de diferentes sistemas e características, tais como o Nb [43,44], supercondutores de alta  $T_c$  (HTSC- sigla em inglês) como o  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_x$  [45] e o YBaCuO [46, 47], sistemas granulares [48], sistemas híbridos de chumbo com nanopartículas magnéticas embutidas [49], filmes finos [47, 50], entre outros.

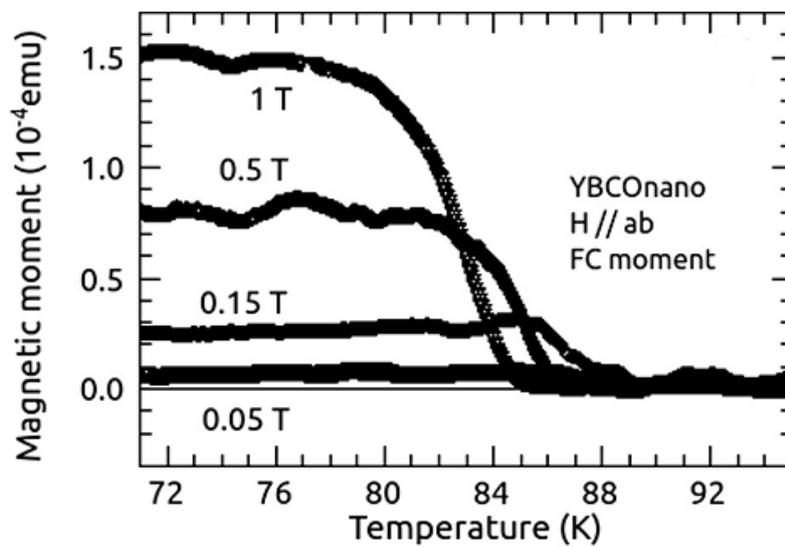


Figura 1.11: Momento magnético em função da temperatura para campos magnéticos entre 0,05 e 1 T aplicados no plano da amostra, revelando a presença do efeito Meissner paramagnético (PME) [47].

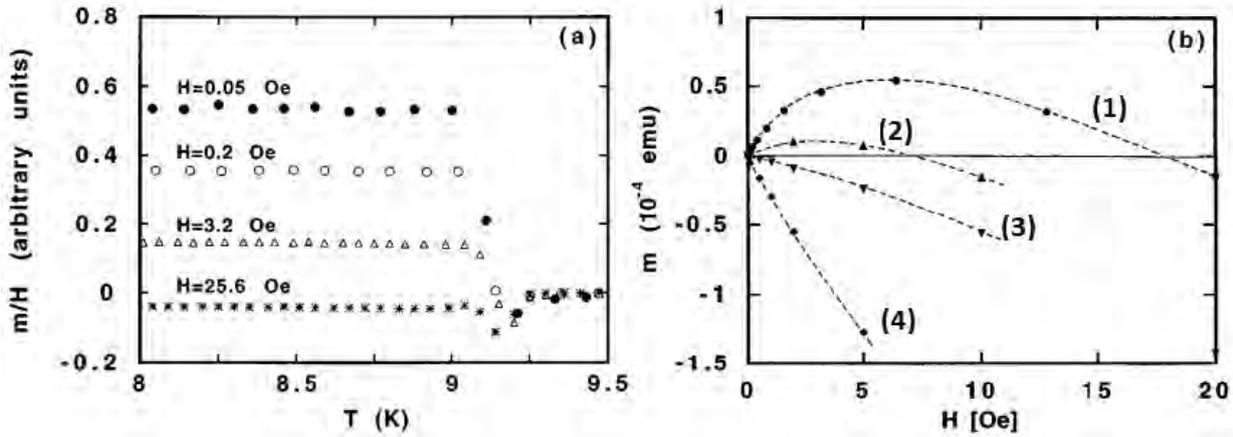


Figura 1.12: (a) Medidas de susceptividade magnética ( $M/H$ ), em *Field Cooling*, para um disco de Nb de 0,25 mm de espessura, com diferentes valores de campos aplicados; para  $H = 25,6$  Oe a resposta é diamagnética. (b) Curvas de  $M(H)$  para uma série de amostras de Nb; as curvas correspondem a amostras (discos de Nb) de diferentes espessuras e grau de pureza: (1) espessura de 0,25 mm com 99,9% de pureza, (2) 0,51 mm de espessura e 99,99 %, (3) 0,2 mm e 99,99999% (Nb ultra puro), (4) 0,3 mm 99,8 % [44]. Estas curvas correspondem à primeira curva de magnetização, ou curva virgem, nas curvas de histerese.

Uma série de teorias foram formuladas para explicar o PME. Em certos casos [51, 52], supõe-se que numa amostra exista uma rede de junções Josephson do tipo  $\pi$ . As razões propostas para o surgimento de tais junções incluem o tunelamento dos elétrons (com mudança de estado de seu spin) através de impurezas magnéticas aleatórias, o tunelamento indireto dos pares através da impureza localizada na junção e o tunelamento de elétrons com pareamento  $d$  entre grãos com orientação superficial diferente. Assim, do acoplamento dos grãos nas junções  $\pi$  surgem espontaneamente laços de correntes que supostamente criam momentos magnéticos exibidos no PME [43]. Esta explicação pode ser válida para sistemas como os HTSC ou sistemas granulares.

O Nb é geralmente considerado um SC convencional, mas a presença do PME em algumas amostras de Nb indica que este efeito pode ser explicado de uma forma mais convencional, sem precisar de mecanismos de pareamento exóticos. Os resultados de  $M(T)$  e  $M(H)$  de algumas amostras de Nb (figura 1.12) apresentam resultados de PME semelhantes às reportadas nos sistemas HTSC como YBCO (figura 1.11) [47]. Neste caso, as amostras com diferentes preparações da superfície (graus de polimento e pureza do elemento), podem ter um sinal paramagnético menor e em alguns casos apresentar uma resposta diamagnética, como podemos ver na figura 1.12(b). Para este caso, o PME é diferente ao encontrado em sistemas HTSC. Para explicar o PME, partimos da abordagem habitual indicada para a supercondutividade a baixa temperatura. Devido a estrutura da amostra (discos como na referência [44]), as órbitas dos elétrons localizadas nas flutuações da deformação da rede situam-se principalmente nos planos de camada. Graças ao considerável comprimento de coerência do Nb, que define a dimensão da região de localização, estes elétrons têm um momento magnético grande. Em campos magnéticos fracos, estes momentos se alinham facilmente ao longo do campo.

A rotação do momento magnético ocorre pela transição de emparelhamento dos elétrons na camada mais próxima com outra orientação. As camadas vizinhas com orientação diferente estão somente na superfície da amostra. Devido a isso, se a camada da superfície é removida, o PME desaparece. A reorientação dos momentos ocorre muito rápido, graças à grande mobilidade do par de elétrons [43].

Por outro lado, o sinal paramagnético pode ser obtido quando as correntes superficiais conseguem prender o fluxo magnético no interior da região central da amostra, isso é chamado de “estado de vórtice gigante” [44]. Devido a um aprisionamento não homogêneo do fluxo, que pode ocorrer durante o resfriamento da amostra, se o fluxo é comprimido, ultrapassando sua própria expulsão, teríamos então um sinal paramagnético. Resultados encontrados tanto em discos de Nb [44] como em filmes finos [53], suportam a ideia de que o PME se desenvolve como resultado da compressão dos vórtices desde a borda da amostra para o interior, criando assim uma região “livre” de vórtices entre a borda e o interior.

## 1.6 Sistemas híbridos Supercondutor/Ferromagnético

Os sistemas híbridos FM/SC apresentam efeitos anômalos [54–56]. Isso implica em efeitos de proximidade [54] e o efeito Meissner paramagnético regulável [49]. O efeito Meissner paramagnético (*PME* do inglês) [44, 49, 50] é um efeito aparentemente contraditório da teoria que explica a supercondutividade e que especifica o efeito *Meissner* diamagnético (*DME* sigla em inglês), uma propriedade bem fundamental dos supercondutores.

### 1.6.1 Aspectos Gerais dos Sistemas Híbridos Ordenados SC/FM

Um sistema híbrido ordenado pode ser também obtido como uma estrutura feita por camadas de materiais diferentes (ver figura 1.13). Sistemas com mais do que três camadas FM e SC podem se comportar como válvulas de *spin* mais complexas.

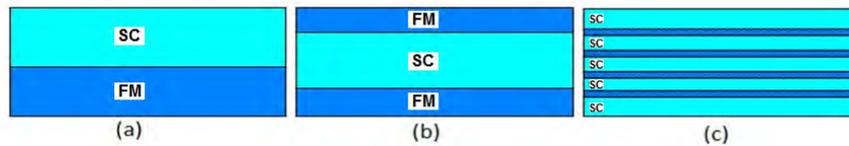


Figura 1.13: Esquema de sistemas híbridos: (a) bicamada FM/SC, (b) tricamada FM/SC/FM e (c) multicamadas SC / FM (franjas escuras).

Um aspecto físico interessante nestas estruturas é a dependência da  $T_c$  supercondutora com os parâmetros da estrutura, em particular da espessura da camada magnética, homogeneidade da mesma, número de camadas magnéticas, etc. Para sistemas como filmes finos, a  $T_c$  supercondutora mostra uma dependência forte com os parâmetros da estrutura. Isso pode ser visto nas válvulas de *spin* com camada separadora SC. Por exemplo, quando a espessura da camada FM ( $d_{FM}$ ) aumenta, mantendo fixa a espessura da camada SC ( $d_{SC}$ ), a  $T_c$  diminui rapidamente até certo valor de  $d_{FM}$ , onde a supercondutividade poderia cancelar-se dependendo do material SC. Para valores maiores de  $d_{FM}$ , apresenta um comportamento oscilatório (figura 1.14(a)) [54, 57, 58]. Por outro lado, quando  $d_{FM}$  é fixa e varia-se  $d_{SC}$ , a  $T_c$  apresenta um comportamento crescente que tende ao valor da  $T_c$  do supercondutor na forma *bulk*, onde a forma da curva de  $T_c(d_{SC})$  é convencional: com a diminuição da espessura da camada SC a  $T_c$  diminui lentamente, depois reduz a zero quando se aproxima de um valor crítico mínimo de espessura da camada SC ( $d_{SC}^{crit}$ ). Para valores superiores a  $d_{SC}^{crit}$  ( $d_{SC} \gg d_{SC}^{crit}$ ), a  $T_c$  se aproxima do valor de saturação próximo aos valores de um supercondutor tipo *bulk* [56, 57]. Um exemplo do comportamento da  $T_c$  em relação à espessura das camadas ( $T_c(d_{FM})$  e  $T_c(d_{SC})$ ) é mostrado na figura 1.14(a). Para uma tricamada CuNi/Nb/CuNi a saturação de  $T_c$  ocorre para valores grandes de  $d_{Nb}$  (espessura da camada de Nb), verificando-se um valor *bulk* de  $T_c \approx 8$  K para o Nb. Este valor ainda é menor que a temperatura esperada do Nb puro ( $T_c \approx 9.9$  K). A diferença é devida às impurezas residuais e outros defeitos encontrados nas camadas. Ambas dependências de  $T_c$

têm origem no efeito de proximidade<sup>5</sup>. Esse efeito é devido ao espalhamento dos elétrons dos pares de Cooper no material FM e é microscopicamente descrito considerando a reflexão de Andreev [54].

No limite das camadas de Nb finas, o efeito de proximidade torna-se maior, o que resulta uma redução da  $T_c$  até uma espessura crítica  $d_{SC}^{crit} \approx 160 \text{ \AA}$ , abaixo da qual a supercondutividade está totalmente suprimida [58].

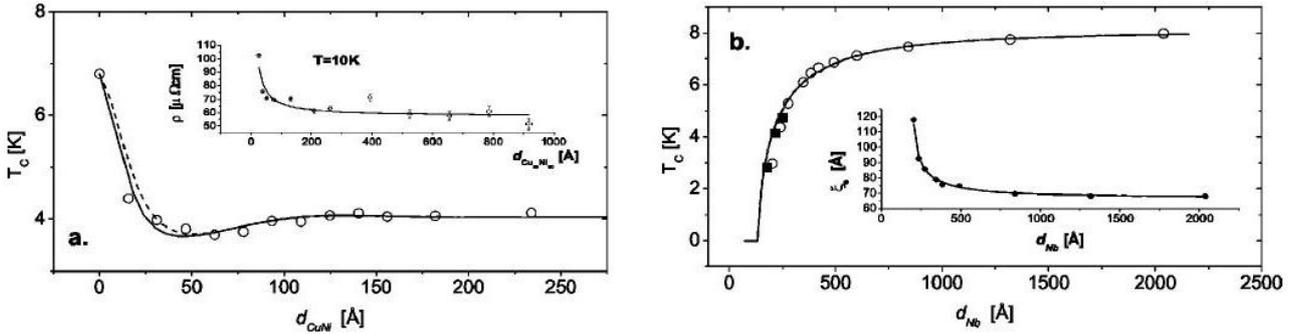


Figura 1.14: (a) Curva de  $T_c$  em função da espessura das camadas FM para tricamadas do sistema CuNi/Nb/CuNi,  $d_{CuNi} = d_{FM}$ . Na inserção a resistividade no regime de baixas temperaturas de uma monocamada de CuNi é plotada em função de  $d_{CuNi}$ . (b) Curva de  $T_c$  em função da espessura das camadas SC,  $d_{Nb} = d_{SC}$ , a inserção mostra  $\xi_{SC}$  vs  $d_{SC}$ . A linha solidada é um ajuste linear dos dados com a hipótese da escala onde  $\xi_{SC} \sim T_c^{1/2}$  [58].

## 1.6.2 Válvulas de *Spin* Supercondutoras

Resultados experimentais recentes em estruturas híbridas revelam que o efeito de *exchange bias* causa um acréscimo da temperatura crítica supercondutora  $T_c$ . Estes tipos de estruturas podem ser constituídas por sistemas de multicamadas onde a localização da camada SC pode mudar, como mostram diferentes trabalhos publicados. Um exemplo é o estudo de sistemas compostos por multicamadas (FM/AF), definidas pelo nome em Inglês como ML, em contato com uma camada SC (ML/SC), como mostra a figura 1.15. Um trabalho publicado por Stamopolus e colaboradores [59], mostra que o efeito *Exchange bias* influencia o comportamento da camada SC, este surpreendente resultado junto com os resultados de magnetização [59, 60], sugerem que a coexistência do efeito de *exchange bias* e a supercondutividade deve ter um efeito conjunto.

Na figura 1.15 podemos observar as curvas de transporte e magnetização que caracterizam o sistema híbrido ML/SC, cuja magnetização  $M(T)$  foi medida desde  $T = 2 \text{ K}$  até  $T = 350 \text{ K}$  aplicando um campo externo  $H_{ex} = 100 \text{ Oe}$ . Estas medidas foram feitas em dois casos: quando o sistema não foi submetido a uma orientação magnética ou virgem (V), e quando a amostra foi orientada por um campo magnético externo,  $H = 50 \text{ kOe}$  na temperatura  $T_N < 230 \text{ K} < T_C$ , para a amostra *biased* (BS). O efeito *Exchange bias* controla o comportamento magnético da parte ML.

<sup>5</sup>Comparando a intensidade do campo com o efeito, esse efeito é desprezível.

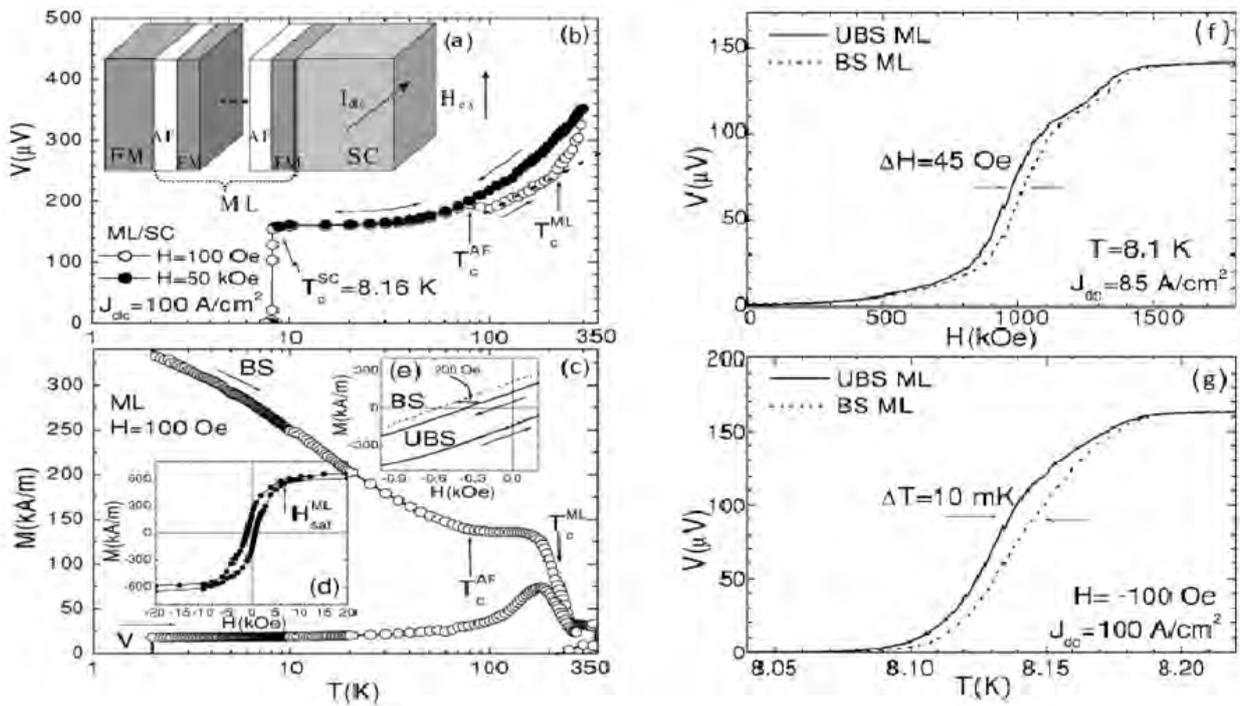


Figura 1.15: (a) Desenho esquemático do sistema híbrido [AF/FM]/SC e sua configuração experimental com respeito ao campo externo  $H_{ex}$ . (b) Curva de voltagem em função da temperatura  $V(T)$  medida desde valores abaixo da  $T_c = 8,16$  K até  $T = 350$  K para os campos aplicados de 100 Oe e 50 kOe. (c) Curva de magnetização em função da temperatura  $M(T)$  onde podemos observar as medidas do sistema virgem ( $\vec{V}$ ) e submetido a uma orientação magnética ou *biased* ( $BS$ ). (d) Curva de histerese com campo de saturação  $H_{sat} = 7$  kOe. As curvas de voltagem das amostras orientadas ( $BS$ ) e as desorientadas com saturação ( $UBS$ ), para (e) medidas de  $V(H)$  em  $T = 8,1$  K e (f) medidas de  $V(T)$  aplicando um campo magnético  $H = 100$  Oe [59].

Para observar se este efeito tem alguma influência sobre o comportamento magnético da camada SC, medidas de transporte são representadas pelas curvas (e) e (f) da figura 1.15. Neste caso temos medidas da amostra *BS* que é comparada com a amostra submetida a um processo de desorientação, amostra *unbiased (UBS)*, mostrando que a curva da amostra *BS* fica abaixo da curva *UBS*. Isso mostra que a supercondutividade está sendo reforçada quando a camada SC experimenta o efeito *Exchange bias* devido à multicamada *ML* [59].

Em outro caso, Suszka e colaboradores apresentam uma estrutura de uma pseudo-válvula de *spin*<sup>6</sup> com uma camada supercondutora no topo do sistema, como *capping layer* [61]. A resposta magnética sobre o eixo fácil de orientação magnética da amostra (ou *easy axis EA*) mostra duas (ou mais) mudanças abruptas na magnetização que são próprias das camadas FM (figura 1.16). Para este exemplo, a curva de histerese (com aparência quadrada) tem duas mudanças abruptas: a primeira mudança é devido a camada de NiFe em  $\pm 170$  Oe, enquanto que a segunda mudança ocorre em  $\pm 600$  Oe, isto caracteriza a inversão na magnetização do Co. A presença da anisotropia uniaxial assegura a criação de estados colineares paralelos e antiparalelos nas camadas FM.

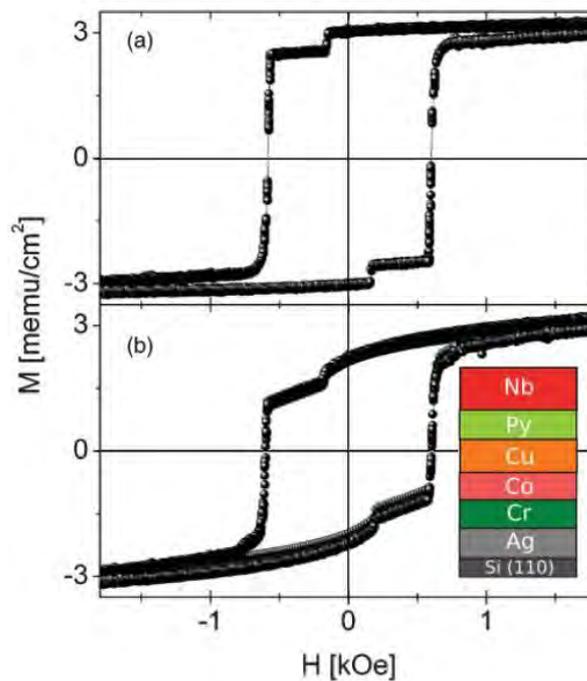


Figura 1.16: Curvas de histerese medida no intervalo de temperaturas entre 3 e 10 K para duas orientações de campo magnético aplicado na amostra: (a) ao longo do eixo de orientação preferencial (EA) e (b) a  $45^\circ$  deste eixo para a pseudo-válvula de *spin* [61].

<sup>6</sup>Estas estruturas são similares às válvulas de *spin* convencionais, mas além de fixar uma das camadas FM com uma camada AFM. Estas estruturas usam camadas FM diferentes, as quais podem ser diferentes materiais FM (com diferente coercividade magnética) ou camadas FM com espessuras diferentes.

Esta resposta magnética pode mudar se o campo aplicado não está orientado na direção do eixo  $EA$ , como mostra a figura 1.16(b). A resposta magnética muda quando o campo magnético é aplicado a  $45^\circ$  com respeito ao eixo  $EA$ . No entanto, devido ao torque gerado pelo campo magnético aplicado e as diferentes constantes de anisotropia das duas camadas, seu estado de orientação da magnetização é dependente do campo e não é mais necessariamente colinear. Isso é causado por uma inclinação da magnetização nas camadas quando seu eixo  $EA$  está longe da direção do campo magnético aplicado, o que também faz com que a curva de histerese tenha uma aparência diferente da quadrada [61].



Figura 1.17: Imagem de TEM da válvula de *spin* supercondutora  $Nb/Cu_{41}Ni_{59}/nc - Nb/Co/CoO_x$  e desenho da mesma. As setas indicam a possível orientação dos momentos magnéticos nas camadas FM [5].

Outro exemplo de pseudo-válvula de *spin* é apresentado no trabalho de Zdravkov e colaboradores, o qual usa uma camada supercondutora em contato com o substrato (camada *buffer layer*) [5]. A teoria das heteroestruturas híbridas com duas camadas ferromagnéticas (FM/SC/FM) prevê a geração de um tripleto de emparelhamento ímpar em frequência de longo alcance, no alinhamento não colinear (NCA, sigla em Inglês) das magnetizações das camadas FM. Este tripleto pode ser detectado em válvulas de *spin* supercondutoras. Como mostra a figura 1.17, a válvula de *spin*  $Nb/Cu_{41}Ni_{59}/nc - Nb/Co/CoO_x$  apresenta uma camada de Nb muito fina como espaçador entre as camadas FM, a qual é usada como condutor normal (NC), neste caso a camada supercondutora é usada como *buffer*. A resistência da amostra em função de um campo magnético externo indica que, para campos não muito elevados, o sistema é supercondutor quando há um alinhamento colinear das magnetizações das camadas de  $Cu_{41}Ni_{59}$  e Co, mas muda para o estado de condução normal na configuração de NCA (figura 1.17). Isto indica que o valor da  $T_c$  para NCA é menor do que a medida de temperatura estabelecida. A existência de um mínimo de  $T_c$ , no regime NCA para alinhamentos paralelos ou antiparalelos dos momentos magnéticos das camadas FM, é consistente com a previsão teórica [5].

Em outros trabalhos, como os apresentados por Sosnin e Bergeret [62, 63], o efeito de *exchange bias* foi usado para fixar a magnetização de uma das camadas FM. Fenomenologicamente isto pode ser visto como um parâmetro que controla a nucleação e a orientação dos domínios magnéticos

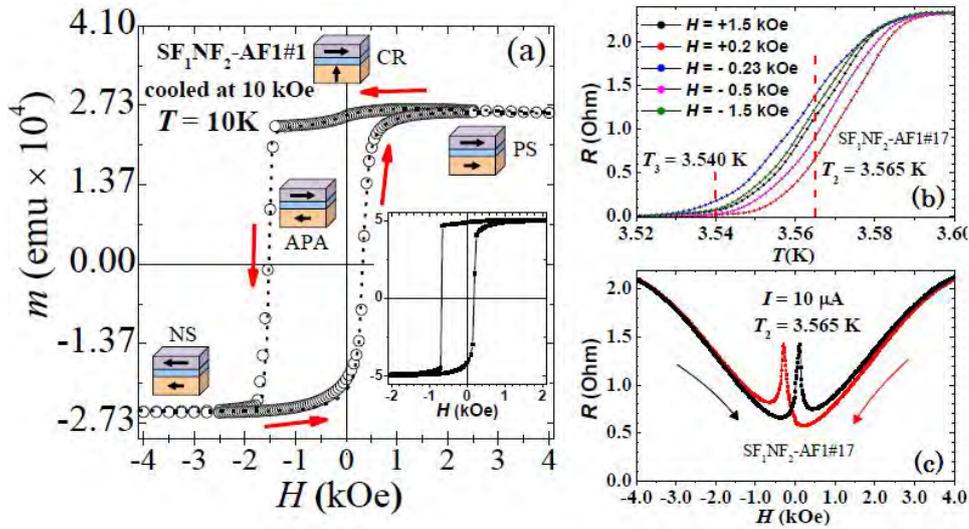


Figura 1.18: (a) Curva de histerese da válvula de *spin*  $Nb/Cu_{41}Ni_{59}/nc - Nb/Co/CoO_x$  mostrando as diferentes fases de alinhamento dos momentos magnéticos das camadas FM. (b) Transporte elétrico em função da temperatura  $R(T)$  em diferentes campos magnéticos aplicados. (c) Curvas de magnetorresistência  $R(H)$  em  $T_2 \approx 3,565$  K [5].

em um FM, que é um parâmetro importante nesta estrutura. Uma vez que foi observado que a configuração magnética paralela aumenta a supercondutividade, assume-se que este efeito promove o estado supercondutor favorecendo o alinhamento dos domínios magnéticos no FM. Em última instância, isso poderia estar relacionado com a existência de uma supercorrente (*spin tripleto*) [62] uma vez que, em tais condições um estado de *spin-singlete* deve ser reprimido devido à influência do campo de troca do FM [63].

Por outro lado, temos um dispositivo de válvula de *spin*, mas neste caso o espaçador é uma camada SC. O efeito de proximidade pode levar ao fenômeno da orientação *spin - dependente* da supercondutividade, observado experimentalmente por Gu e colaboradores [9], onde a dependência da orientação da magnetização das camadas FM é representada pela  $T_c$  da camada SC. A orientação da magnetização no sistema FM/SC/FM pode ser controlada por um campo magnético fraco, o qual é insuficiente para suprimir a supercondutividade, este sistema pode ser alternado entre um estado supercondutor a um estado normal a partir da configuração das magnetizações das camadas FM.

Para uma configuração em paralelo ( $T_{c,P}$ ) ou em antiparalelo ( $T_{c,AP}$ ) respectivamente, onde foi observado que  $T_{c,AP} > T_{c,P}$ . A figura 1.19 mostra as configurações das camadas FM no sistema, estas configurações são conseguidas ao aplicar um campo magnético, onde podemos observar também o comportamento típico de uma válvula de *spin* (figura 1.19(b)). Quando o campo aplicado é o suficientemente fraco podemos observar as diferenças entre as duas temperaturas críticas [9].

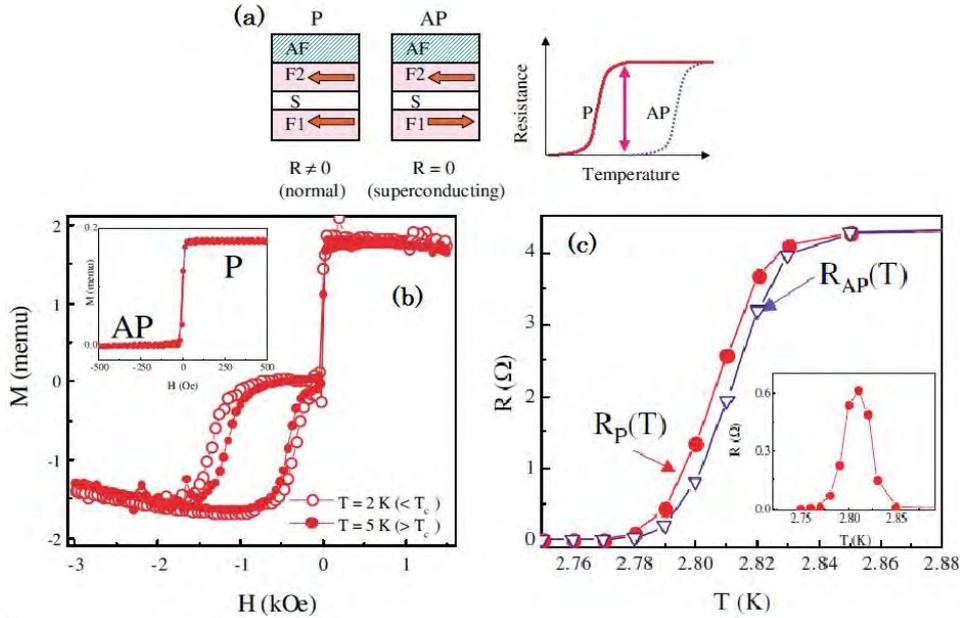


Figura 1.19: (a) Estrutura esquemática FM/SC/FM/AFM, onde podemos observar, pelas setas, que a resistência pode mudar de um valor finito a zero,  $T_{c,P} < T < T_{c,AP}$ . (b) Histerese do sistema  $NiFe(4nm)/CuNi(5)/Nb(18)/CuNi(5)/NiFe(4)/FeMn(6)$ , a inserção indica a mudança de configuração das camadas FM. (c) Transporte  $R_P(300Oe, T)$  e  $R_{AP}(-300Oe, T)$ , na inserção é mostrado  $\Delta R(T) = R_P(T) - R_{AP}(T)$  [9].

Em relação ao efeito das configurações magnéticas nas camadas FM em temperaturas próximas à  $T_c$  da camada SC, resultados observados por Potenza e Marrows mostram um comportamento magnético típico de uma válvula de *spin* [58]. As medidas magnéticas apresentam valores distintos da coercividade das camadas FM, pois os efeitos de domínio tais como o campo de *Exchange* e a geração espontânea de vórtices não desempenham um papel significativo para o sistema Ta/NiFe/CuNi/Nb/CuNi/NiFe/Ta [58].

Em vários trabalhos foram usados materiais magneticamente moles (ligas metálicas) a fim de reduzir a intensidade da separação de troca na banda de condução,  $E_{ex}$ , e o aumento no comprimento de penetração  $\xi_{FM}$  para os pares de Cooper. Em sistemas FM/SC/FM, onde as camadas FM são de materiais magneticamente duros, pode ser obtida uma grande variação na  $T_c$  entre os estados de configuração paralela (P) e antiparalela (AP). Em tricamadas de Ni/Nb/Ni a  $T_c$  mostra uma mudança significativa dependendo da orientação mútua das camadas FM. Como mostra a figura

1.20(a), podemos observar os resultados da  $T_c$  em função da espessura da camada SC, onde é calculada uma espessura crítica próxima a  $d_{rSC} \approx 16,5$  nm [10].

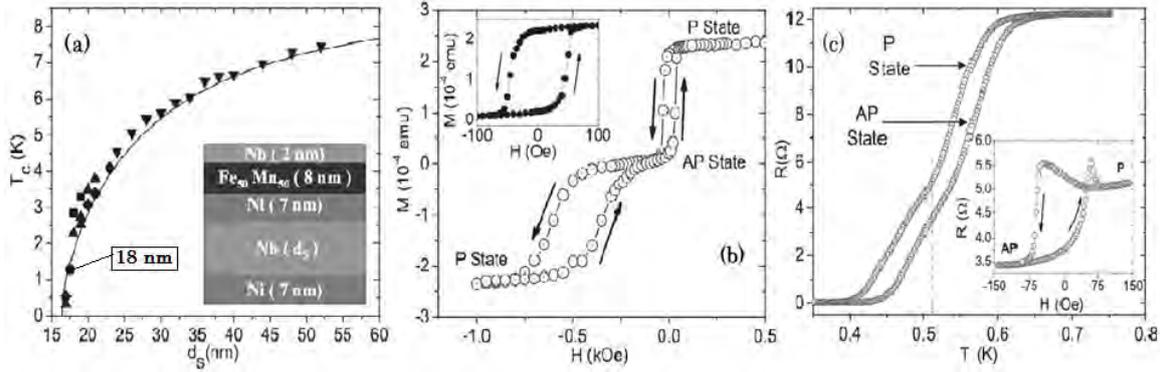


Figura 1.20: (a) Curva da  $T_c$  em função da espessura das camadas SC e estrutura esquemática do sistema  $Ni(7nm)/Nb(d_S)/Ni(7)/FeMn(8)/Nb(2)$ . (b) Curva de histerese da amostra com  $d_{SC} = 18$  nm, a inserção mostra o laço de histerese da camada FM livre medido a  $T = 2,29$  K. (c) Medidas de transporte para os estados P e AP de uma amostra com  $d_{SC} = 17$  nm em campos de  $\pm 100$  Oe. As duas transições são observadas dando como resultado um  $\Delta T_c = 28$  mK, a inserção mostra curvas de  $R$  vs  $H$  em  $T = 0,51$  K ref. [10].

O comportamento magnético apresentado por uma amostra com  $d_{SC} = 18$  nm é típico de uma válvula de *spin* normal, a curva de histerese estreita, perto de  $H = 0$ , mostra o comportamento de comutação da camada FM livre, enquanto que a curva mais larga mostra a comutação da camada presa, esta é deslocado em um valor de  $H \neq 0$ , devido ao efeito *Exchange bias* entre a camada superior Ni e o FeMn. Por outro lado, os campos aplicados de  $\pm 100$  Oe mudam a configuração P e a AP da válvula de *spin*. Quando a magnetização está próxima de zero pode-se observar um alinhamento AP entre a camada livre e a presa para  $-100$  Oe, enquanto que a magnetização saturada observada em  $+100$  Oe mostra um alinhamento P que pode ser obtido também a baixas temperaturas, como é mostrado na inserção da figura 1.20(b). As medidas de transporte que mostram a  $T_c$  das configurações P e AP, figura 1.20(c), foram feitas aplicando campos magnéticos de  $+100$  e  $-100$  Oe, a maior mudança na temperatura crítica,  $\Delta T_c = T_{c,P} - T_{c,AP}$ , deve acontecer em amostras com espessura da camada de Nb próxima a  $d_{SC}$  [10].

Outro fenômeno que podemos estudar, é a presença de vórtices nas válvulas de *spin*, como podem ser afetados e como podem modificar o comportamento magnético destes sistemas. Por causa do efeito de proximidade, quando o par de Cooper penetra no FM, estes experimentam o campo de troca da camada FM gerando o chamado estado de Fulde-Ferrel-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) [54,64], onde a ordem de penetração corresponde ao comprimento de coerência ferromagnético  $\xi_{FM}$ . Considerando os efeitos devidos aos campos dispersos<sup>7</sup>, estes podem vir tanto das paredes de domínio como dos polos magnéticos, os quais penetram o SC. Como as paredes de domínio podem ser classificadas em

<sup>7</sup>Também conhecidos como *stray field*.

dois tipos, de Néel e Bloch, nas quais a magnetização fica na superfície e fora do plano respectivamente [11]. Para camadas FM grossas, as paredes de Bloch podem gerar vórtices no SC na direção fora do plano, afetando sua corrente crítica [65]. Ao diminuir a espessura das camadas FM, o campo desmagnetizante aumenta mudando as paredes de domínio, com o qual as paredes de domínio podem mudar de uma orientação normal para uma no plano.

Quando os pares de Cooper penetram nas camadas FM, estes começam a decair até uma determinada distância e oscila devido à defasagem ocasionada pela energia de troca (*exchange energy*) do material FM [64]. Usualmente a penetração dos pares de Cooper nas camadas FM acontece sem efeitos de campos dispersos desde as paredes de domínio; neste caso usamos as seguintes expressões para os comprimentos de coerência, no SC [66] e no FM [67]:

$$\xi_{SC} = \left( \frac{\hbar D_{SC}}{2\pi k_b T_c} \right)^{1/2}, \quad (1.23)$$

$$\xi_{FM} = \frac{\hbar v_F}{2E_{ex}}, \quad \text{respectivamente,} \quad (1.24)$$

onde  $D_{SC}$  é o coeficiente de difusão no supercondutor,  $k_b$  é a constante de Boltzmann,  $v_F$  é a velocidade de Fermi no FM e  $E_{ex}$  é a energia de troca do FM. Devemos considerar que a equação 1.23 é válida para temperaturas próximas a  $T_c$ <sup>8</sup> [35, 68].

Em válvulas de spin como Ni(30 Å)/Nb(25 Å)/Ni(30 Å)/CoO(20 Å)/Nb(20 Å) [69], como mostra a figura 1.21, notamos que a histerese acima de  $T_c$  mostra uma rotação gradual da camada presa, quando a amostra está abaixo de  $T_c$  ocorre uma inversão dos vórtices de forma abrupta. Mostrando que uma configuração inteiramente paralela das camadas FM não é necessária para inverter os vórtices restantes. Isto poderia ser explicado como vórtices que podem ser afetados pelo efeito médio da magnetização de cada uma das camadas. Assim, quando a magnetização da camada presa é negativa, os vórtices giram para o sentido negativo. Isso ocorre mesmo que o camada presa ainda tenha alguns domínios que apontam na direção positiva. Quando a magnitude do campo negativo é ainda maior, o número de vórtices na direção do campo aumenta devido à fase de criação de vórtice até que a amostra esteja preenchida com o fluxo na direção negativa, onde a magnetização tende a zero.

Quando a camada livre muda de orientação, as alterações da distribuição dipolar do campo, fornece uma intensidade de campo menor ou quase zero entre as camadas FM. O ponto chave neste caso é que a direção dos vórtices sempre se encontra na direção da magnetização, o qual é oposto ao efeito dos campos dispersos. Como mostra a figura 1.22, que é semelhante à curva de histerese da figura 1.21(b), mas com uma modificação, podemos observar que a curva fica semelhante à histerese de um SC de tipo II convencional, com uma importante exceção. Isso é devido a inversão dos vórtices, com o qual a aniquilação de vórtices convencional é inexistente, deixando o sistema sujeito a três processos dominantes: a pinagem, a inversão e a criação de vórtices.

<sup>8</sup>Para a teoria de Ginzburg-Landau temos que  $\Delta(T) \sim (T_c - T)^{1/2}$ , portanto  $\xi \sim |T_c - T|^{-1/2}$

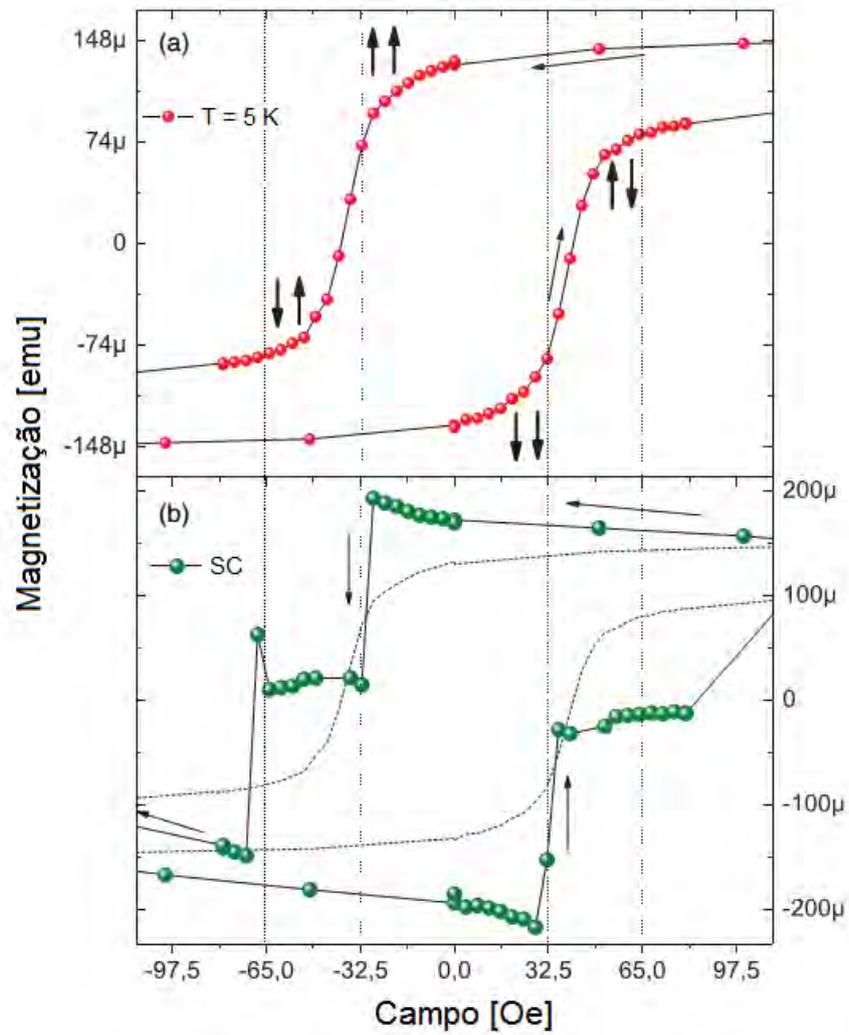


Figura 1.21: Visualização ampliada nas curvas de histerese da válvula de *spin* Ni(30 Å)/Nb(25 Å)/Ni(30 Å)/CoO(20 Å)/Nb(20 Å). (a) Histerese magnética acima de  $T_c$  ( $T = 5$  K). As setas em negrito indicam as configurações relativas das camadas FM. (b) Histerese da contribuição SC [69].

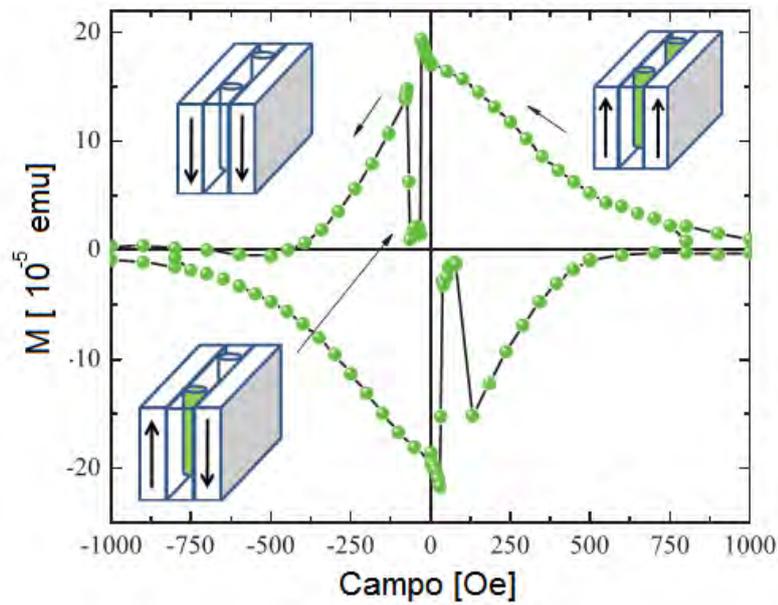


Figura 1.22: Curva de magnetização modificada ( $M$ ) obtida tomando o valor absoluto do ciclo de histerese na 1.21(b) para magnetização no campo crescente (campos positivos ou negativos) após da inversão dos vórtices. As inserções mostram a dinâmica dos vórtices em três diferentes faixas de campo; cores escuras (verde) e claras (branco) que correspondem à orientação oposta dos vórtices [69].

Devido aos resultados encontrados nestes sistemas, não é possível explicar este comportamento em termos do campo dispersos, já que este ponto é oposto à direção da magnetização, enquanto que os vórtices sempre apontam na direção da magnetização. Por outro lado, estas curvas são explicadas como resultado da interação direta dos vórtices com os elétrons das camadas FM e suas orientações magnéticas independentes [69].

Como é observado nas referências [9, 10], as válvulas de *spin* feitas com um separador supercondutor tem um valor de espessura muito baixo, estes valores são próximos à espessura crítica do SC (espessura das camadas de Nb são  $d_{SC}^{crit} \approx 16$  nm). Isso se deve ao fato de que com valores mínimos da espessura na camada separadora é possível conservar o acoplamento das camadas FM. Aliás, também é possível observar uma maior diferença na  $T_c$  entre a configuração P e a AP [10]. Contudo, pode ser interessante um separador SC com espessura maior para se obter uma  $T_c$  próxima a valores de um material SC *Bulk*. Embora o valor da espessura seja maior, devemos levar em conta que a camada separadora não afete o acoplamento das camadas FM no sistema.

Com respeito a estas pesquisas anteriores, as medidas propostas que poderíamos fazer em nosso trabalho são: medidas de resistência em função da temperatura ( $R(T)$ ) onde podemos encontrar o valor da  $T_c$  para cada amostra. Assim, podemos focar no comportamento magnético para temperaturas abaixo da  $T_c$  para estudarmos como a supercondutividade pode modificar o comportamento magnético das válvulas de *spin*. No caso das medidas de magnetorresistência ( $R(H)$ ), proposta por Zdravkov e colaboradores [5], não é plausível fazer medidas deste tipo, já que a camada SC separa as camadas FM no sistema. Quando a camada separadora está no estado supercondutor, a corrente aplicada na técnica das quatro pontas atravessaria a camada SC, portanto a  $R(H)$  medida seria de uma parte do sistema. As medidas magnéticas  $M(H)$  mostradas nas literatura podem ser feitas usando um equipamento PPMS VSM [10, 61]. Assim podemos observar o comportamento das válvulas de *spin* quando a camada separadora está no estado supercondutor (abaixo da  $T_c$ ).

### 1.6.3 Sistemas Híbridos de multicamadas Nióbio / FM

Todos os sistemas híbridos SC/FM nesse trabalho têm Nióbio como camada supercondutora. Nos últimos anos sistemas desse tipo tem sido estudados por nosso grupo de pesquisa. O autor deste trabalho também fez experimentos com multicamadas baseados em bicamadas do tipo Nb/FM para sua dissertação de mestrado. Discutiremos aqui alguns desses resultados, como eles relacionam aos resultados dessa tese.

Foram preparadas multicamadas SC/FM usando a técnica de deposição por *Magnetron Sputtering* com Nb e diferentes materiais ferromagnéticos (Co e NiFe). A espessura da camada SC foi fixa (500 Å), enquanto que a camada magnética tinha espessuras de 50, 100 e 200 Å. Resultados iniciais nas multicamadas de Nb/Co mostram que para uma camada supercondutora fixa, a  $T_c$  supercondutora varia em função da espessura da camada magnética [54]. O comportamento da  $T_c$ , encontrado a partir de medidas de transporte elétrico, é mostrado na figura 1.23. Onde podemos observar uma dependência de  $T_c$  com a espessura das camadas FM, o qual é um comportamento esperado neste tipo de sistemas. Cabe destacar também que estes resultados devem ser confrontados com os modelos teóricos que preveem uma variação da  $T_c$  devido ao efeito de proximidade [54].

Conforme destacado, as propriedades magnéticas de multicamadas dependem fortemente da sua estrutura. Neste sentido, estudos preliminares foram feitos para investigar as propriedades magnéticas dos sistemas híbridos SC/FM, especificamente Nb/Co e Nb/NiFe. Alguns destes resultados estão mostrados na figura 1.24. A partir destas medidas podemos observar a resposta magnética de cada amostra para diferentes temperaturas. Observa-se também uma coexistência entre supercondutividade e ferromagnetismo em temperaturas abaixo de  $T_c$ , a qual é mais intensa para temperaturas muito menores.

Para as medidas magnéticas nestas temperaturas, abaixo de  $T_c$ , indicamos o comportamento da curva de histerese, a qual apresenta uma trajetória normal, além de ter sido modificada pela contribuição supercondutora, como é mostrado com as setas vermelha (1) (curva da primeira magnetização), verde (2) (redução do campo), e azul (3) (laço da curva que fecha a histerese). Ao analisar estas curvas encontramos os campos irreversível ( $H_{irr}$ ) e crítico ( $H_{C2}$ ), os quais representam a junção dos laços da curva de histerese e o início da saturação magnética. Estes valores de campo estão relacionados com as mudanças de fase nas camadas supercondutora, as quais podem ser analisadas com maior detalhe nos gráficos das figuras 1.24 e 1.25.

A contribuição supercondutora se obtêm ao subtrair duas curvas de histerese de diferentes temperaturas para eliminar a resposta FM. Para isso usamos uma curva com temperatura superior a  $T_c$  (amostra em estado normal) e uma com valor inferior a  $T_c$  (amostra em estado supercondutor) a  $T_c$ . O resultado desta subtração é mostrado nos gráficos da figura 1.25, onde encontramos a resposta magnética da contribuição SC das amostras de Nb/Co(100 Å) e Nb/NiFe(100 Å). Esta contribuição mostra um comportamento típico de um material SC tipo II, com algumas modificações da interação com as camadas FM. Entre as pequenas mudanças destas curvas, encontramos que os laços de cada curva se juntam no valor de campo  $H_{irr}$ , mas as amostras seguem sendo supercondutoras neste valor. Quando as curvas atingem o valor de campo  $H_{C2}$ , estas apresentam um valor de magnetização zero (ou próximo) indicando uma mudança do estado supercondutor ao estado normal [70].

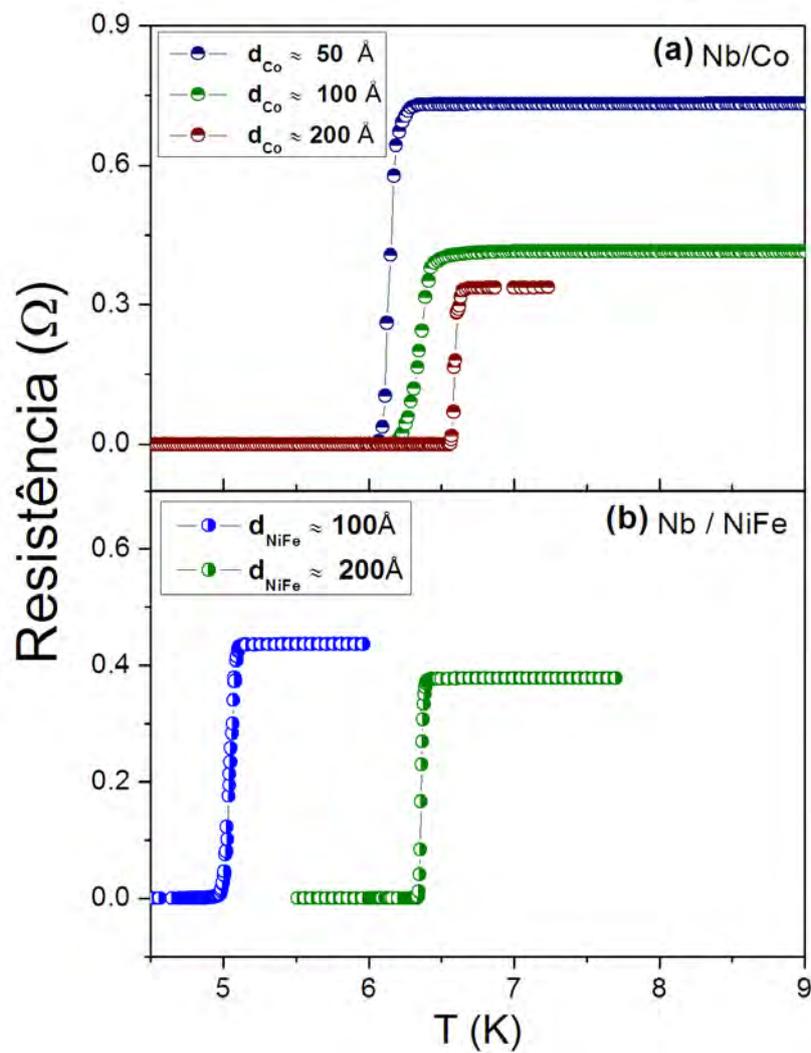


Figura 1.23: Curvas de resistência em função da temperatura das multicamadas (a)  $Si/[Nb(500\text{\AA})/Co(d)]_{\times 5}/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$  e (b)  $Si/[Nb(500\text{\AA})/NiFe(d)]_{\times 5}/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$  [70].

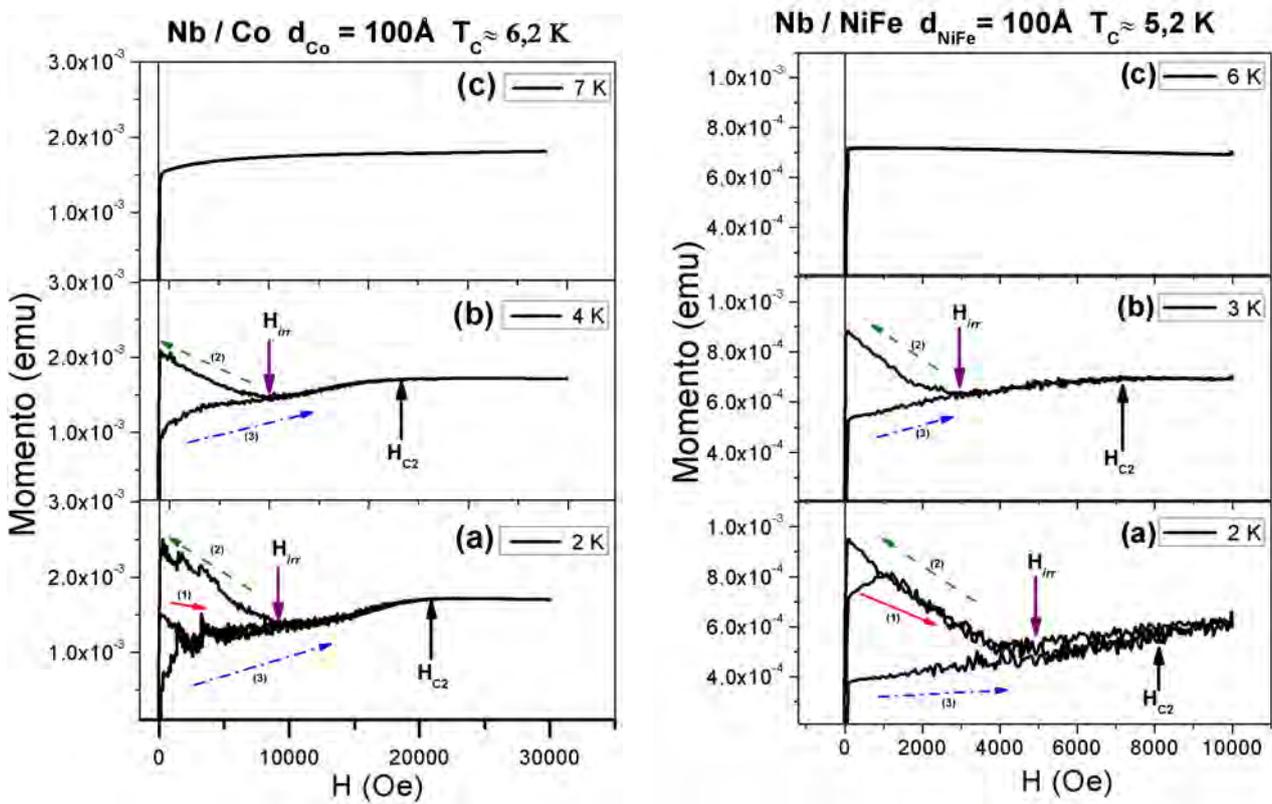


Figura 1.24: Resposta magnética a um campo magnético aplicado em diferentes temperaturas para as multicamadas  $Si(111)/[Nb(500\text{\AA})/Co(100\text{\AA})]_{\times 5}/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$  e  $Si(111)/[Nb(500\text{\AA})/NiFe(100\text{\AA})]_{\times 5}/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$ . A seta vermelha (1) indica a curva virgem ou primeira magnetização, enquanto que as setas verde (2) e azul (3) mostram o sentido da curva de histerese. Além disso pode-se observar  $H_{irr}$  e  $H_{C2}$  em (a) e (b) (ref. [70]).

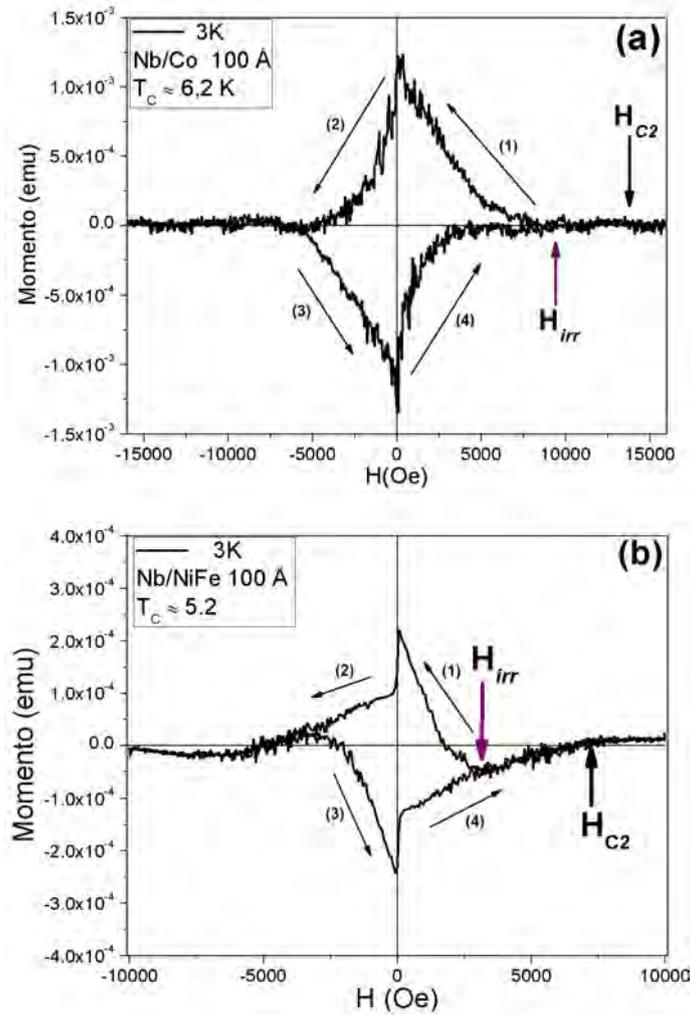


Figura 1.25: Contribuição SC das amostras: (a)  $Si(111)/[Nb(500\text{\AA})/Co(100\text{\AA})]_{\times 5}/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$  e (b)  $Si(111)/[Nb(500\text{\AA})/NiFe(100\text{\AA})]_{\times 5}/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$ . Onde pode-se observar  $H_{irr}$  e  $H_{C2}$ , as setas (1), (2), (3) e (4) indicam a trajetória das curvas [70].

Como a resposta magnética da contribuição SC corresponde a um supercondutor de tipo II, os valores de campo  $H_{irr}$  e  $H_{C2}$ , estão relacionados com a presença de vórtices supercondutores nas camadas SC. Onde estes vórtices apresentam uma mudança de fase sólida ( $H < H_{irr}$ ), na qual os vórtices se encontram fixos no sistema, a uma fase líquida ( $H_{irr} < H < H_{C2}$ ) onde estes mesmos vórtices estão movendo-se, com o qual não podemos definir se correspondem ao laço de redução ou aumento do campo magnético.

Por outro lado, se comparamos a resposta magnética das duas amostras, se observa que estas tem algumas diferenças de forma e valores de campo, as quais estão relacionadas com a natureza das camadas FM, pois o Co é um material magneticamente duro e o NiFe é magneticamente mole. Onde observamos alterações da magnetização em campo zero (pulos) próprias dos sistemas com NiFe como material FM nos sistemas híbridos [70].

## Capítulo 2

# Técnicas Experimentais

Neste capítulo abordamos os detalhes técnicos deste trabalho. Discutiremos primeiro o método do crescimento (*Magnetron Sputtering*) e os métodos usados para caracterização das amostras (Raios-X, transporte e magnetização), com descrições dos equipamentos.

### 2.1 Técnica de Pulverização Catódica *Magnetron Sputtering*

Esta técnica é usada amplamente no crescimento de filmes finos e consiste em ionizar um gás (geralmente inerte) entre dois eletrodos, gerando um plasma a partir de um campo elétrico entre os eletrodos. O material que é usado para depositar o filme, conhecido como alvo, está localizado em um dos eletrodos, os quais estão ligados à uma fonte de potencial negativo, e a superfície usada para depositar o filme (substrato) está sobre um porta-amostras que atua como segundo eletrodo, geralmente o porta-amostras é aterrado ou mantido em potencial flutuante [71]. O campo elétrico gerado entre os eletrodos ioniza o gás usado produzindo íons positivos, que são acelerados em direção ao alvo negativo; a colisão entre os íons e o alvo arranca átomos e moléculas (partículas neutras) por transferência de energia. As partículas ejetadas do alvo vagam através do gás e se depositam na superfície do substrato, produzindo o filme. Dependendo da condutividade elétrica do alvo, o campo elétrico pode ser gerado por diferentes tipos de fontes elétricas. No caso de alvos metálicos, com boa condutividade elétrica, se usam fontes de corrente contínua (DC). No entanto, para materiais isolantes, semicondutores ou com baixa condutividade, o campo elétrico aplicado pode ser obtido de fontes de corrente alternada por sinais de radiofrequência (RF) da ordem de MHz. Entretanto, para os alvos isolantes é possível também usar fontes do tipo DC, mas estas fontes aplicam correntes de forma pulsada (DC-pulsar) tendo o mesmo efeito das fontes RF, com a vantagem de aplicar uma potência, maior dependendo do caso.

A ionização dos átomos do gás se processa pelas colisões com os elétrons livres no plasma. Para aumentar a eficiência desta ionização pode-se confinar os elétrons perto da superfície do alvo. Para conseguir isso, aplicamos um campo magnético que obriga a gerar o plasma próximo ao alvo. Esta

técnica de pulverização denomina-se *Magnetron Sputtering*. Assim, o alvo além de estar ligado a uma fonte de potencial, também está instalado sobre um arranjo de imãs permanentes dispostos de modo tal que geram um campo magnético constante ao redor do alvo (figura 2.1).

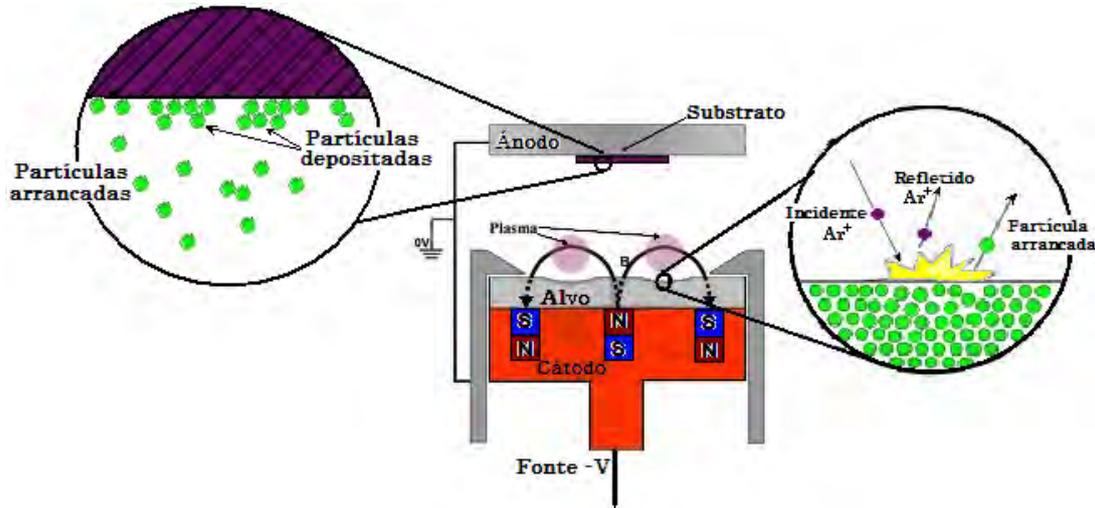


Figura 2.1: Desenho esquemático de um *magnetron* destacando as partes internas e o processo de *sputtering*.

Na presença do campo magnético, os elétrons estão sujeitos à força de Lorentz:

$$\vec{F} = (m \, d\vec{v}/dt) = -q(\vec{\epsilon} + \vec{v} \times \vec{B}), \quad (2.1)$$

onde  $q$ ,  $m$  e  $\vec{v}$  são a carga, a massa e a velocidade do elétron, respectivamente.

Devido à força de Lorentz, os elétrons produzidos no cátodo pelo campo elétrico ( $\vec{\epsilon}$ ), são acelerados contra o ânodo fazendo um movimento helicoidal em torno das linhas de campo magnético ( $\vec{B}$ ), contribuindo assim, para a ionização do gás em uma região próxima ao alvo (armadilha magnética). Desta forma a densidade de ionização é aumentada nessa região permitindo uma taxa de deposição maior [15].

As válvulas de *spin* que são analisadas neste trabalho foram preparadas usando a técnica de *Magnetron Sputtering* no Laboratório de Filmes Finos do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas (CBPF). Este laboratório tem um equipamento modelo *ATC-2400* da *AJA International*; o qual possui duas câmaras cilíndricas: uma câmara principal onde é realizado o processo de *sputtering*; esta câmara está acoplada a uma câmara menor (ou antecâmara) através de uma válvula manual de ultra alto vácuo, pela qual é possível colocar e retirar os porta-substratos da câmara principal sem ter que quebrar vácuo desta última.

Como mostra a figura 2.2, na câmara principal encontram-se instalados cinco *magnetrons*, dispostos circularmente na base da câmara, três deles são para alvos de 50 mm de diâmetro (2") e dois para alvos de 40 mm de diâmetro (1,5"). Cada alvo é instalado sobre os *magnetrons*, os quais são ligados às fontes de potencial DC, RF ou DC-Pulsada dependendo do tipo de material usado como alvo. O

equipamento possui três fontes DC, duas fontes RF e uma fonte DC-Pulsada. Também possui uma base giratória, na qual é possível colocar até cinco porta-substratos. Além disso, nesta base também encontra-se uma caixa suporte, a caixa contém um sistema de aquecimento usado para processos de deposição em temperaturas de aproximadamente  $1000^{\circ}\text{C}$ . Além dos *magnetrons* instalados na base da câmara principal, o equipamento também tem instalada uma célula *Knudsen* usada para o crescimento de filmes de materiais enriquecidos com isótopos através de evaporação térmica.

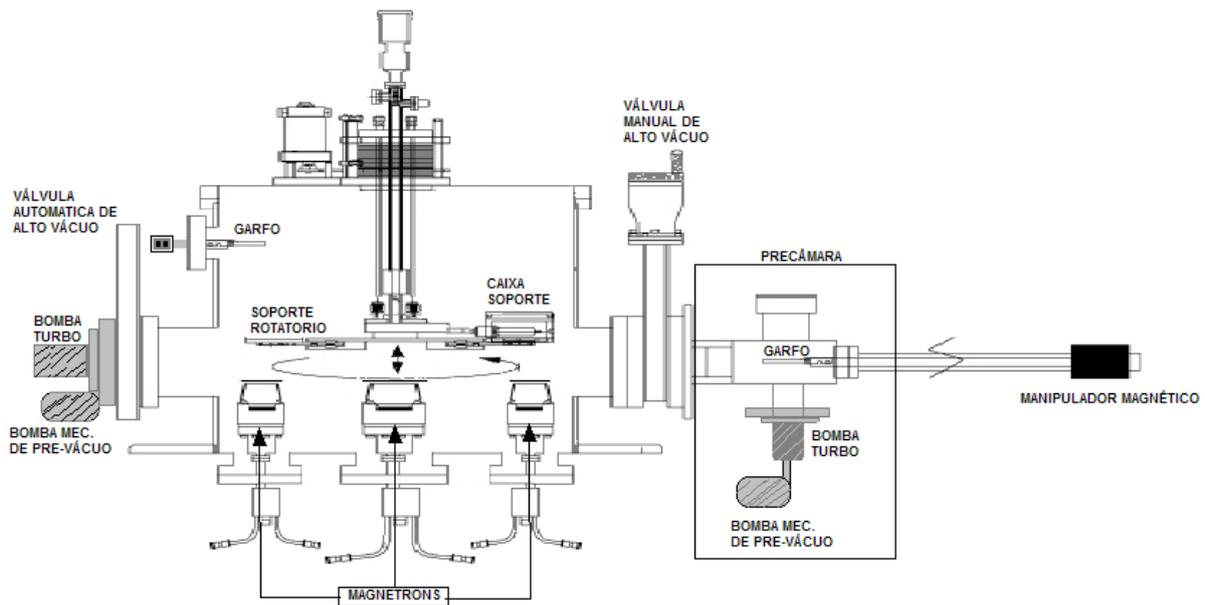


Figura 2.2: Esquema do *Magnetron Sputtering* do CBPF.

A antecâmara é composta por um garfo (figura 2.2), que é usado para inserir e retirar os porta-substratos da câmara principal através da válvula de alto vácuo. Cada câmara tem sistema de bombeamento independente. Em primeiro lugar, para garantir um ambiente limpo para o processo de deposição na câmara principal, precisa-se de um nível de pressão inicial (pressão base) da ordem de  $2 \times 10^{-8}$  Torr; o processo de deposição se realiza em uma atmosfera de gás (em nosso caso gás argônio) com valores de pressão da ordem de  $\pm 10^{-3}$  Torr (pressão de trabalho); desse modo, é possível controlar a taxas de deposição de cada alvo.

Outros fatores importantes na deposição dos filmes neste sistema são o espaçamento entre o substrato e o alvo e a energia aplicada das fontes de potencial, pois a variação destes fatores afeta diretamente a taxa de deposição de cada material. O controle destes fatores, como também da pressão de trabalho, é realizado manualmente pelo usuário do equipamento. O crescimento dos filmes é realizado a partir de uma sequencia programada por computador que controla o posicionamento do porta-substrato sobre os alvos, a abertura e fechamento dos obturadores (*shutters*) e o tempo de exposição do substrato sobre o alvo (tempo de deposição).

## Calibrações e Crescimento das Amostras

Para controlar a espessura de cada camada das amostras depositadas, precisamos determinar uma taxa de deposição para cada alvo usado na preparação destes sistemas, como as válvulas de *spin*. Cada taxa de deposição é determinada a partir do seguinte procedimento: depositamos uma monocamada de cada alvo sobre um substrato utilizando as mesmas condições de temperatura do substrato, distância alvo-substrato, tempo de exposição sobre o alvo, potência das fontes DC ou RF e pressão (de base e trabalho), que serão utilizadas depois para crescimento das válvulas de *spin*; estes filmes são conhecidos como amostras de calibração. Então realizamos uma difractometria de raios-X em baixos ângulos (de  $0,9$  a  $8^\circ$ ) destas amostras, também chamada refletividade, para determinar a espessura depositada das monocamadas, e assim calcular as taxas de deposição usadas durante o processo de *sputtering*.

## 2.2 Caracterização por Difração de Raios-X

A difração de raios-X é uma técnica não destrutiva que pode fornecer informação estrutural em escala atômica sobre extensões relativamente grandes da amostra, da ordem do comprimento de coerência estrutural. Geralmente, o difratograma de raios-X  $\theta - 2\theta$  é dividido em duas regiões de análise: a região de refração ou baixos ângulos ( $2\theta < 15^\circ$ ) que é feita abaixo da primeira reflexão de Bragg resultante do espalhamento proveniente da modulação química das camadas, e a região de difração ou altos ângulos ( $2\theta > 15^\circ$ ), que depende do comprimento de coerência estrutural normal às camadas.

### 2.2.1 Refletividade ou Difração em Baixos Ângulos

Antes de fabricar filmes finos dos sistemas SC/FM, é preciso controlar a quantidade de material que vai ser depositado, a fim de formar uma camada com uma determinada espessura. Para poder obter estas quantidades, usamos medidas de refletividade de raios-X (baixos ângulos) de cada material. Quando uma monocamada de densidade uniforme é depositado sobre um substrato, a refletividade normal de Fresnel do substrato fica modulada por oscilações devido às interferências entre os raios refletidos na superfície da interface ar/filme e filme/substrato (figura 2.3), estas oscilações são chamadas franjas de Kiessig.

Desta forma, o ângulo que o raio incidente faz com o substrato não é simplesmente  $\theta$  e sim um ângulo de incidência corrigido  $\theta_c$ , que sofreu refração ao passar do ar para o filme, este pode ser obtido através da lei de Snell [72].

$$n \cos \theta_c = \cos \theta. \quad (2.2)$$

O índice de refração do ar é considerado como 1 e  $n$  é o índice de refração do filme dado pela relação

$$n = 1 - \delta - i\beta. \quad (2.3)$$

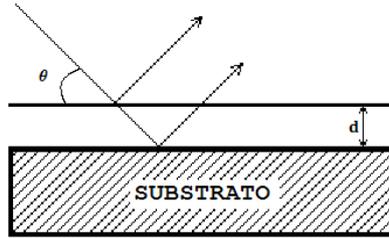


Figura 2.3: Interferência entre os feixes difratados nas interfaces ar/filme e filme/substrato.

$\delta$  e  $\beta$  podem ser obtidos partindo de

$$\delta = \frac{e^2 \lambda^2}{2\pi m_e c^2} (Z + f') N_a, \quad (2.4)$$

$$\beta = \frac{\lambda \mu_l}{4\pi}. \quad (2.5)$$

onde  $e$  e  $m_e$  são a carga e a massa do elétron,  $c$  é a velocidade da luz,  $Z$  é o número atômico,  $f'$  é a parte real da absorção anômala,  $N_a$  é a densidade atômica e  $\mu_l$  é o coeficiente de absorção linear [73].

A lei de Bragg modificada pode ser escrita como

$$k\lambda = 2d \sin^2 \theta_c, \quad (2.6)$$

onde  $k$  é a ordem de reflexão e  $d$  é a espessura do filme. Considerando só a parte real do índice de refração do filme, temos então:

$$\sin^2 \theta = \left( \frac{\lambda n}{2d} \right)^2 + 2\delta. \quad (2.7)$$

Fazendo  $f(x) = ax^2 + bx + c = \sin^2 \theta$  e  $x = n$ , o coeficiente angular da função do 2º grau formada é:

$$a = \left( \frac{\lambda}{2d} \right)^2, \quad (2.8)$$

A espessura do filme é dada, então, por

$$d = \frac{\lambda}{2\sqrt{a}}. \quad (2.9)$$

## Calibração

Para determinar as espessuras depositadas das monocamadas de calibração, foram analisados os espaçamentos das franjas de Kiessig. Partindo da equação 2.9, usando o comprimento de onda da radiação  $K_\alpha$  do cobre  $\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$ <sup>1</sup>, obtemos a espessura de filmes de monocamadas depositados em tempos pré-determinados, mantidas as seguintes condições físicas para qualquer deposição:

- A temperatura do substrato ( $T_s \approx 22^\circ\text{C}$ );
- A distância entre o alvo e o substrato (10,3 cm);
- A pressão base ( $< 5 \times 10^{-8}$  Torr).

Por exemplo, para determinar a taxa de deposição de um material como o Nb depositado sobre um substrato de silício, Si (111), podemos partir da curva de refletividade, com o qual repetimos o mesmo procedimento com os outros materiais usados para a produção de multicamadas.

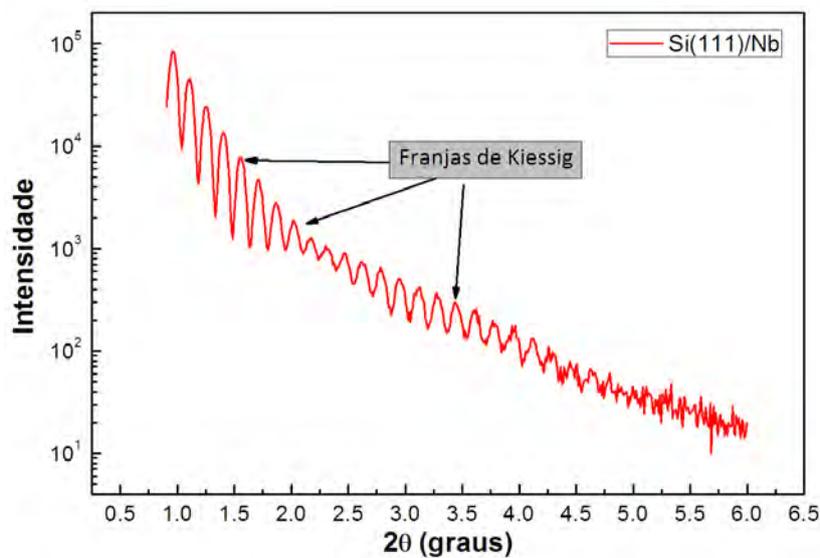


Figura 2.4: Espectro de refletividade de raios-X de um filme de Nb depositado sobre um substrato de Si(111).

Usando um gráfico do espectro de refletividade de raios-X (figura 2.4), é possível ver as franjas de Kiessig, pelas posições angulares dos máximos nas franjas é possível plotar um gráfico de  $\sin^2(\theta)$  em função do número de medidas  $n$  (equação 2.7) e fazer um ajuste para conhecer a função que representa o gráfico 2.5. A função encontrada a partir deste ajuste é  $f(x) = B_2x^2 + B_1x + c$ , que pode ser igualada com a equação 2.7, (onde  $B_2 = a$  e  $B_1 = b$ ). O valor do coeficiente angular na

<sup>1</sup>Para o ânodo e cátodo de um equipamento de raios-X convencional.

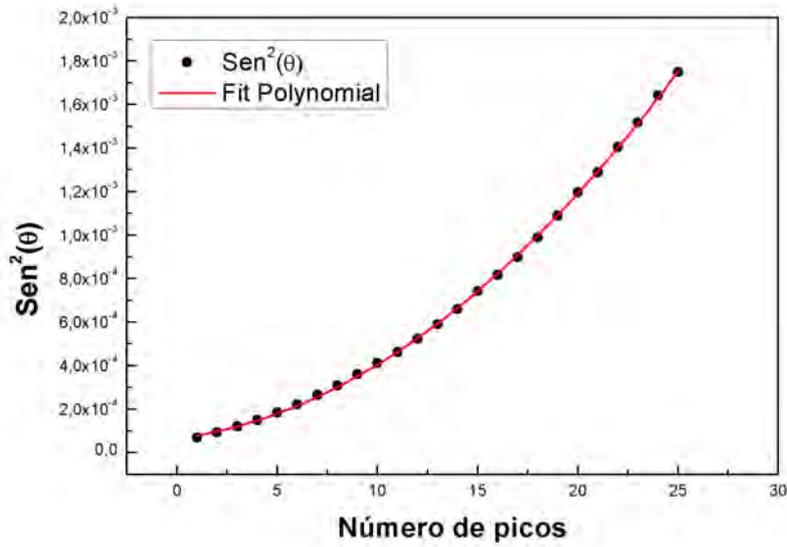


Figura 2.5: Ajuste polinomial obtido através do espectro de reflectividade de raios-X do Nb depositado em substrato de Si(111) durante um período de 900 s.

equação de 2º grau é representado no ajuste do gráfico com o valor de  $B_2$ , partindo deste valor e o valor de  $\lambda$ , definimos a espessura final da monocamada com a equação 2.9.

Considerando que as condições físicas antes detalhadas mantenham-se estáveis, a taxa de deposição  $T_x$  é obtida da divisão entre a espessura calculada  $d$  e o tempo de deposição  $t$  usado na deposição de cada monocamada de calibração,

$$T_x = \frac{d}{t}. \quad (2.10)$$

Levando em conta o tempo de deposição usado para cada material é  $t = 900$  s, obtém-se finalmente a taxa de deposição do Nb ( $T_{Nb} = 0,476$  Å/s). Os valores das taxas de deposição de cada alvo usado para os sistemas híbridos são calculados a partir da equação 2.10 e apresentados na tabela 2.1.

Alvo	Tempo de deposição (s)	Espessura (Å)	Taxa (Å/s)
Ta	900	486	0,540
Nb	900	428	0,476
Co	800	1211	1,520
NiFe	900	882	0,980
IrMn	900	629	0,699

Tabela 2.1: Relação de alvos usados na preparação das válvulas de *spin*.

## Multicamadas

Para o caso de uma multicamada, com um super período  $\Lambda$  resultante de empilhamentos coerentes, a curva de refletividade é composta por franjas de Kiessig, correspondentes às reflexões das superfícies externas da multicamada (interfaces ar/multicamada e multicamada/substrato) e picos de Bragg, correspondentes às reflexões nas diversas interfaces. Através da separação angular entre as franjas de Kiessig ( $\Delta\theta$ ) pode-se calcular a espessura total  $t$  da multicamada usando a relação obtida a partir da lei de Bragg [74]:

$$d = \frac{\lambda}{2 \operatorname{sen} \Delta\theta}. \quad (2.11)$$

Usando a posição angular dos picos de Bragg é possível determinar o super período, da mesma maneira que se obtém  $t$  na equação 2.7. Mudando  $t$  por  $\Lambda$ , tem-se:

$$\operatorname{sen}^2 \theta = \left( \frac{\lambda n}{2\Lambda} \right)^2 + 2\delta. \quad (2.12)$$

A rugosidade interfacial das multicamadas é diretamente proporcional à declividade da curva de refletividade. Assumindo que a rugosidade da interface  $Q(z)$  pode ser descrita por uma função Gaussiana, a função de densidade de probabilidade em termos da posição na interface é:

$$Q(z) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp \left\{ \frac{-z^2}{2\sigma_y^2} \right\}. \quad (2.13)$$

onde  $z$  é a posição na interface e  $\sigma$  é o desvio padrão médio ou rugosidade média quadrática. Experimentalmente um dos parâmetros que pode ser calculado das medidas de refletividade é a rugosidade quadrática média.

### 2.2.2 Difração em Altos Ângulos

Nesta região de altos ângulos, a difração de raios-X é chamada de difração convencional e é usada para determinar a textura cristalográfica dos filmes. A difração convencional de raios-X por um sólido pode ser descrita como a reflexão especular da radiação incidente numa família de planos da rede cristalina. Os feixes de radiação refletidos em um plano e nos planos adjacentes diferem por um fator de fase que depende do caminho percorrido. A diferença de caminho percorrido pelos feixes refletidos nos planos adjacentes é de  $2d \operatorname{sen}\theta$ , onde  $d$  é distância interplanar e  $\theta$  é o ângulo de incidência. Para interferência construtiva, esta diferença de caminhos é dada pela lei de Bragg [75]:

$$2d \operatorname{sen} \theta = n\lambda. \quad (2.14)$$

Onde  $\lambda$  é o comprimento de onda dos raios-X e  $n$  representa um índice inteiro, conhecido como a ordem da reflexão.

Dada a posição angular de um pico de difração de Bragg pode-se encontrar o vetor da rede recíproca  $\vec{G}$  e a distância interplanar  $d$  referentes à família de planos associados ao pico de difração. O módulo de  $\vec{G}$  está relacionado com a distância  $d$  através da expressão:

$$d = \frac{2\pi}{|\vec{G}|}. \quad (2.15)$$

Com esta expressão, podemos encontrar os parâmetros de rede da estrutura cristalina do material estudado. Outro dado importante que pode ser extraído da difração convencional é o tamanho de grão cristalino ou comprimento de coerência estrutural presente no material. Geralmente, os filmes que são preparados pela técnica de *sputtering* apresentam estruturas policristalinas. No sentido normal ao plano do filme cada camada é formada por basicamente um grão, excluindo-se a interdifusão atômica e a possível discordância dos parâmetros de rede na interface. O tamanho de grão pode ser estimado a partir da largura de linha a meia altura do pico difratado através da formula de Scherrer [75]:

$$\xi = \frac{0.9\lambda}{b \cos\theta}, \quad (2.16)$$

onde  $\xi$  é o tamanho de grão,  $b$  é a largura de linha a meia altura e  $\theta$  o ângulo de incidência.

## 2.3 Técnicas Realizadas com PPMS DynaCool

Entre os sistemas para caracterizar amostras, o *Physical Property Measurement System* (PPMS) é o mais popular, devido à sua grande versatilidade para medir diferentes tipos de parâmetros e dependências da temperatura e do campo magnético. Além de poder variar facilmente tanto a temperatura como o campo magnético aplicado, este equipamento pode realizar medidas automatizadas junto com a vantagem de poder adaptar-se a quase qualquer experimento usando diferentes opções de medida.

O equipamento usado neste trabalho é um PPMS *DynaCool*; este equipamento da *Quantum Design* tem a mesma funcionalidade de um PPMS normal, mas usa um refrigerador de tubo de pulso em duas fases para esfriar tanto a bobina supercondutora (bobina que gera o campo magnético no equipamento) como o sistema de controle de temperatura, proporcionando um ambiente de baixa vibração durante os experimentos. O *DynaCool* emprega um sistema de monitoramento baseado em fluxo de gás  $^4\text{He}$  único que lhe dá rápidos ciclos de temperatura e o preciso monitoramento da temperatura esperado de um PPMS normal.

O sistema não precisa de Hélio líquido e opera em um intervalo de temperaturas de 1,8 K – 400 K e tem uma bobina que pode gerar campos de até 9 Tesla.

### 2.3.1 Magnetometria

O método de *Vibrating Sample Magnetometer* (VSM) foi desenvolvido por Simon Foner, em 1959, e é baseado na mudança ocorrida no fluxo magnético de uma bobina quando em sua proximidade se faz vibrar uma amostra que está sob a ação de um campo magnético uniforme aplicado. Essa técnica permite realizar medidas em função do campo magnético, da temperatura e da orientação cristalográfica, sendo assim aplicada em diferentes tipos de materiais magnéticos [76]. O princípio básico de operação de um VSM consiste em uma variação de fluxo magnético produzindo indução de uma voltagem em uma bobina detectora. A voltagem induzida dependente do tempo é dada pela seguinte equação

$$V_{coil} = \frac{d\Phi}{dt} = \left( \frac{d\Phi}{dz} \right) \left( \frac{dz}{dt} \right), \quad (2.17)$$

onde  $\Phi$  é o fluxo magnético através da bobina detectora,  $z$  é a posição vertical da amostra com respeito à bobina e  $t$  é o tempo. Para uma oscilação senoidal da posição da amostra temos que:

$$V_{coil} = 2\pi f C m A \text{sen}(2\pi f t), \quad (2.18)$$

onde  $C$  é a constante de acoplamento,  $m$  é o momento magnético da amostra,  $A$  é a amplitude de oscilação e  $f$  é a frequência de oscilação.

A aquisição das medidas do momento magnético implica em medida dos coeficientes da resposta da voltagem senoidal pelas bobinas de detecção; a figura 2.6 mostra como é realizado esse processo com o PPMS VSM.

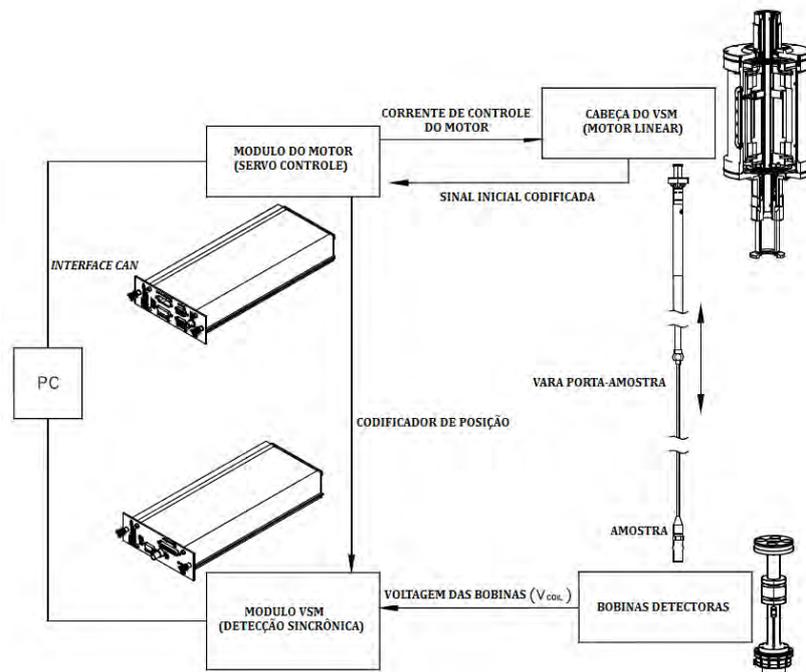


Figura 2.6: Esquema do princípio de operação para o PPMS VSM.

### O Conjunto de Bobinas Detectoras

O módulo suporte das bobinas detectoras contém um gradiômetro de primeira ordem, junto com um termômetro para o monitoramento da temperatura na amostra. O termômetro está inserido no meio das bobinas detectoras; este dispositivo é construído com material não magnético para não afetar as medidas da amostra. Com respeito às bobinas, estas fazem parte de um gradiômetro de primeira ordem. Diferente do gradiômetro SQUID, o gradiômetro do VSM PPMS tem uma sensibilidade menor ( $< 10^{-6}$  emu ou 0,5%), mas tem a vantagem de permitir medidas de uma qualidade satisfatória em um tempo menor do que o SQUID. As dimensões do suporte de Bobinas detectoras padrão são indicadas na figura 2.7. O centro do gradiômetro está localizado a 40,1 mm acima da posição correspondente à superfície do suporte principal. Esta posição corresponde à posição central dos magnetos de campo alto (14 T ou maior) e a região de homogeneidade de campo menor (7 T - 9 T) [77].

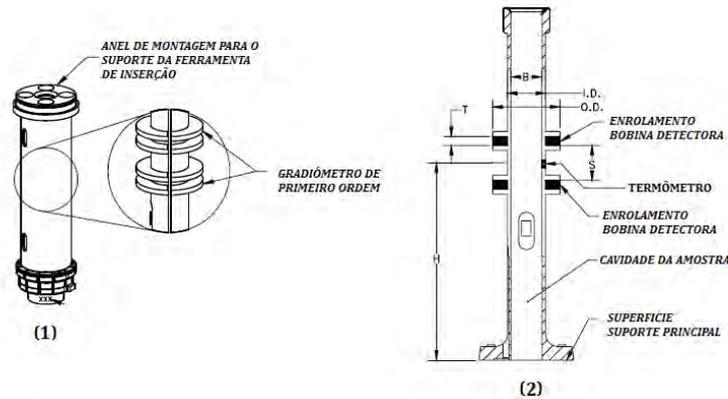


Figura 2.7: (1) Módulo padrão de bobinas detectoras e (2) diagrama interno do módulo, com as dimensões: Cavidade da amostra ( $B$ ) = 6,33 mm, espessura da bobina ( $T$ ) = 1,78 mm, espaçamento entre bobinas ( $S$ ) = 7,11 mm, diâmetro interno das bobinas ( $I.D.$ ) = 7,73 mm, diâmetro externo das bobinas ( $O.D.$ ) = 13,7 mm, altura sobre a superfície do suporte principal ( $H$ ) = 40,1 mm.

### 2.3.2 Transporte Elétrico

Geralmente, os metais obedecem à lei de Ohm que estabelece que a corrente ( $I$ ) que flui em um material é proporcional à queda de potencial ( $V$ ) ao longo do material e, conseqüentemente, o potencial é escrito como  $V = I \cdot R$  [78,79].  $R$  é a resistência do material e depende do tamanho e da forma do material. Assim, a lei de Ohm que é definida como a constante de proporcionalidade entre o campo elétrico  $E$  e a densidade de corrente  $J$  que induz:  $E = \rho \cdot J$ . Como  $E$  e  $J$  são vetores,  $\rho$  é um tensor de segunda ordem. No experimento, o método de quatro pontas é um método comum de medida de resistência elétrica [80,81]. Nele, os fios estão ligados a um material em quatro pontos com uma tinta condutora.

O ETO (*Electrical Transport Option*) permite aos usuários fazer diferentes tipos de medidas de transporte sobre uma ampla gama de valores de resistência e tipos de amostras. Esta opção contém dois canais de medida, cada um deles contém sua própria eletrônica, o que permite fazer medidas simultâneas e contínuas em duas amostras diferentes. A eletrônica de cada canal está composta por uma fonte de corrente de precisão e pré-amplificadores de voltagem acoplados a um DPS (*Digital Signal Processor*). As medidas são feitas geralmente pela aplicação de uma corrente de excitação AC e medindo a resposta de voltagem AC. O DPS é usado para filtrar a resposta AC e escolher a porção da resposta na mesma frequência e fase do sinal de acionamento, eliminando assim o ruído dependente da frequência [82].

A fonte de corrente tem uma precisão mínima de 1 nA e uma corrente máxima de 100 mA. É capaz de fornecer ambas correntes, AC e DC, com frequências desde 0,1 Hz até 200 Hz. Os pré-amplificadores consistem em um amplificador de alto ganho, um amplificador de ganho programável, e um amplificador de alta impedância (corrente). Estes, em conjunção com a fonte de corrente, dão ao ETO um ruído de fundo de 10 nΩ e permite a medição de resistências de até 5 GΩ.

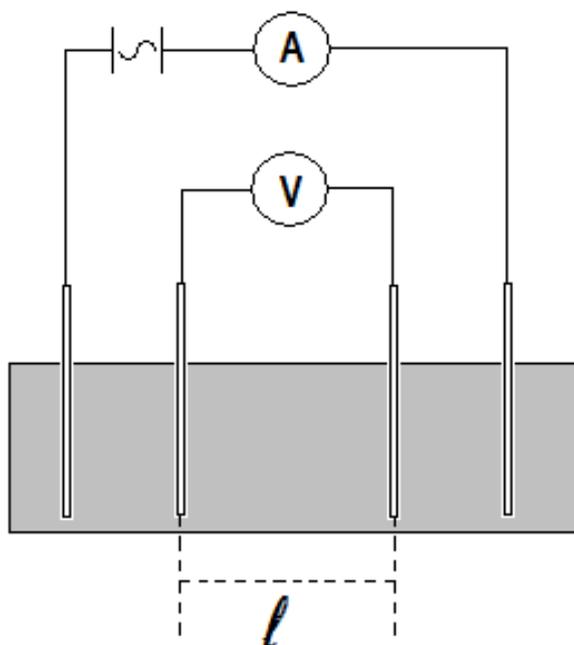


Figura 2.8: Desenho esquemático do método de quatro pontos utilizado para medir a resistência elétrica.

O *DynaCool* é um sistema fechado e Quantum Design não dá todas as informações relacionados ao equipamento. Além do fato que a empresa escolheu o nome *ETO* para a unidade completa, é muito provável que as medidas sejam feitas com um amplificador Lock-In. Esse equipamento é normalmente usado para medidas de transporte de ultra-alta precisão.

# Capítulo 3

## Preparação das Válvulas de *Spin*

Os valores de energia superficial, dos materiais usados neste trabalho, são apresentados na tabela 3.1 [11, 83]; observamos que em poucos casos se cumpre a relação de  $\gamma$ , mencionado no capítulo 1,

$$\gamma_{\text{substrato}} > \gamma_{\text{camada}} + \gamma_{\text{interface}}. \quad (3.1)$$

Isso quer dizer que para maioria das camadas teríamos uma deposição em ilhas desde o início do processo de deposição. Quando uma camada com uma energia superficial maior (por exemplo, NiFe) é depositada sobre uma camada com uma energia superficial menor (por exemplo, IrMn), pode ocorrer uma interdifusão na interface entre as camadas de cerca de 0,5 nm para estabilizar a energia total do sistema [84].

Este tipo de crescimento é o mais comum entre as camadas das válvulas com espessuras baixas, o qual será destacado nos níveis de rugosidade nas interfaces. Nos casos em que a relação 3.1 é cumprida, obtemos uma deposição por camadas, por exemplo, nas interfaces das camadas FM/IrMn para as válvulas de *spin top* ou Nb/FM para parte superior das tricamadas FM/SC/FM. Quando depositamos camadas com espessuras maiores, por exemplo aumentando o tempo de deposição, o mecanismo de crescimento que consideramos é o intermédio ou Stranski-Krastanov (figura 1.1(c)); os níveis de rugosidade diminuem consideravelmente devido a geração de camadas quase homogêneas, mas ainda se encontra interdifusão das camadas na interface [11, 83].

Material	$\gamma [J/m^2]$
Si	1,2
Ta	3
IrMn	2,35
Co	3
NiFe	2,58

Tabela 3.1: Energia livre da superfície de cada material usado para produção das válvulas de spin (valores tomados das referências [11, 83]).

Para obter as amostras de válvulas de *spin* utilizou-se a técnica *magnetron sputtering* (seção 2.1). Os materiais usados para criar os filmes foram depositados sobre substratos de Si(111). O processo de preparação das amostras é detalhado no seguinte procedimento:

- Corte do Substrato. O substrato de Si, que geralmente é produzido em forma de disco com 100 mm de diâmetro, é cortado em pedaços de dimensões menores (aproximadamente 10 mm × 8 mm) para uma ótima manipulação no processo de deposição;
- Limpeza dos substratos;
- Deposição das camadas.

### 3.1 Limpeza dos Substratos

Depois de cortar os substratos em dimensões menores é preciso eliminar qualquer sujeira ou gordura. O seguinte procedimento de limpeza é usado [85]:

1. Colocar os substratos dentro de um recipiente com água deionizada, adicionando uma quantidade pequena de sabão neutro *Extran* (3 gotas para cada 50 ml);
2. Inserir o recipiente dentro de um equipamento de ultra-som por um tempo de 10 minutos;
3. Enxaguar com água deionizada várias vezes até que os resíduos de sabão sejam retirados;
4. Após várias lavagens, preencher o recipiente com acetona (aproximadamente 25 ml) e colocar o recipiente no ultra-som por 10 minutos;
5. Retirar a acetona do recipiente, adicionar álcool isopropílico de forma que todos os substratos fiquem completamente imersos, e aplicar ultra-som novamente por 10 minutos;
6. Manter os substratos imersos em álcool isopropílico para reduzir a impregnação de substâncias indesejáveis em suas superfícies.

Antes de colocar o substrato no porta-substratos do sputtering, deve ser retirado o álcool isopropílico e em seguida secado com um jato de ar ionizado.

### 3.2 Deposição das Camadas

Os parâmetros do processo são ajustados para se obter as composições desejadas. As amostras são produzidas sob a forma de monocamadas ou multicamadas a partir dos alvos de materiais puros ou ligas existentes selecionados de acordo com o sistema a ser estudado. Após a limpeza dos substratos, estes são fixados a um porta substrato (dependendo do processo requerido se fixam um ou mais substratos) para inseri-lo no sistema sputtering (figura 2.2). O porta-substrato é introduzido

manualmente na pré-câmara inserindo-o no garfo, posteriormente, fecha-se a escotilha da pré-câmara e ligam-se as bombas de vácuo (primeiro a mecânica e depois a turbo). Quando o vácuo for aproximadamente igual ao vácuo da câmara principal (próximo a  $10^{-7}$  Torr), abre-se a válvula manual de alto vácuo que faz conexão entre as duas câmaras. É recomendável ter pelo menos uma ordem de diferença nas pressões das câmaras para poder abrir a válvula de acoplamento, e assim, evitar choques de pressão pela diferença de vácuo respectivamente. Depois, o porta-substrato é transportado pelo garfo através da válvula e é colocado no suporte rotatório (dependendo do caso pode ser inserido na caixa aquecedora do suporte), o garfo é retirado da câmara principal após deixar o porta-substrato no suporte, e a válvula manual de alto vácuo é fechada. Com o porta-substrato em posição, segue o processo de deposição explicado na seção 2.1. Tanto os detalhes estruturais e de funcionamento, como uma visão mais detalhada do processo podem ser encontrados nas referências [85, 86].

Neste trabalho, as camadas das válvulas de *spin* foram crescidas aplicando um campo magnético no plano do substrato, assim podemos definir a anisotropia uniaxial das camadas magnéticas no mesmo plano. Para conseguir esta aplicação de campo usamos um arranjo de ímãs permanentes no porta substrato, os quais geram um campo magnético no plano da amostra aproximado de 100 Oe (figura 3.1).

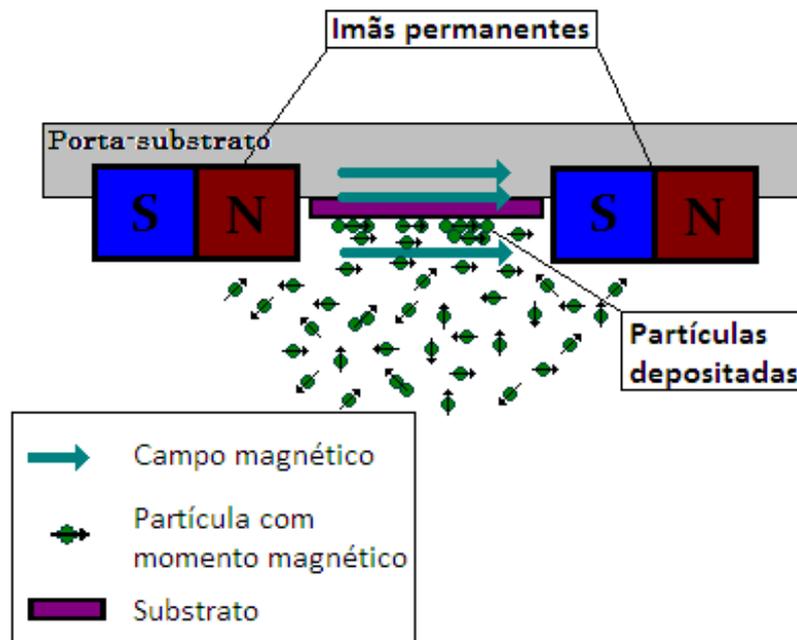


Figura 3.1: Esquema do processo de deposição aplicando um campo magnético no plano do substrato.

### 3.2.1 Válvulas de *Spin* Preparadas

Com as taxas de deposição dos alvos usados nesta tese, as condições físicas de trabalho e os valores correspondentes das fontes de ignição DC e RF (tabela 2.1) já conhecidos, é possível preparar as amostras de válvulas de *spin*, somente calculando os tempos de deposição para cada camada de material na amostra.

As amostras preparadas são de dois tipos diferentes de válvulas de *spin*, *Top* e *Bottom*, como são apresentadas na seção 1.4. Variamos a espessura da camada SC em cada amostra, com a intenção de observar como o comportamento magnético das válvulas de *spin* pode ser afetado pela supercondutividade. Usamos os seguintes materiais em cada camada:

- Para a camada FM usamos cobalto (Co) ou *permalloy* (NiFe) devido as suas naturezas magnéticas, duro e mole, respetivamente. Podemos assim definir diferentes efeitos presentes nas válvulas de *spin*, como o acoplamento entre as duas camadas FM.
- Uma camada AFM de irídio manganês (IrMn).
- A camada SC é de Nb, a qual varia de espessura para definir valores de espessura critica  $d_{SC}^{crit}$  e também para estudar amostras com valores próximos ao Nb *bulk*.
- As camadas *buffer* e *capping*, para um crescimento homogêneo e para evitar a oxidação das amostras, são feitas de tântalo (Ta). Este material é supercondutor somente quando a camada é crescida em uma estrutura *BCC*; isso pode ser conseguido se for depositado sobre um *buffer* como o Nb. Quando o Ta se deposita no substrato de Si, este cresce em uma estrutura tetragonal ( $\beta - Ta$ ), o que mostra que pode ser SC a temperaturas inferiores a 1 K [87].

As amostras estão selecionadas em duas famílias diferentes de válvulas de *spin*, que se diferenciam pelas camadas FM usadas; cada família tem os dois tipos de válvulas (*Top* e *Bottom*). Os valores de espessuras de cada camada magnética é fixo, variando somente o valor da espessura na camada SC. As estruturas produzidas foram as seguintes:

- Família Co
  1. *Top*: Si(111)/Ta(150 Å)/Co(50 Å)/Nb(*d*)/Co(50 Å)/IrMn(150 Å)/Ta(50 Å);
  2. *Bottom*: Si(111)/Ta(150 Å)/IrMn(150 Å)/Co(50 Å)/Nb(*d*)/Co(50 Å)/Ta(50 Å);
- Família NiFe
  1. *Top*: Si(111)/Ta(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb(*d*)/NiFe(50 Å)/IrMn(150 Å)/Ta(50 Å);
  2. *Bottom*: Si(111)/Ta(150 Å)/IrMn(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb(*d*)/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å).

Os valores de “*d*” para a espessura da camada de Nb são 50, 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400 e 500 Å.

Além dessas estruturas, formando um conjunto de 36 amostras, também foi depositada uma amostra troca-se o *buffer* de Ta por um de Nb, o qual pode alterar certas características elétricas e magnéticas na válvula de *spin*.

# Capítulo 4

## Análise e Discussão de Resultados

Neste capítulo apresentamos e analisamos os resultados experimentais obtidos para as amostras de válvulas de spin (top e bottom) com as seguintes composições AFM/FM/SC/FM e FM/SC/FM/AFM, nas quais variamos a espessura da camada de Nb, que pode ser supercondutor. As amostras foram preparadas seguindo os procedimentos descritos no capítulo 3. A caracterização das amostras é realizada com base em três técnicas diferentes: difração de raios-X para definir e analisar a estrutura das camadas em cada amostra, transporte elétrico que permite identificar as amostras que apresentam um comportamento supercondutor e magnetização para observar o comportamento magnético e suas possíveis mudanças na presença do estado supercondutor. Apresentaremos inicialmente o conjunto dos resultados das amostras estudadas começando com a família da válvula de spin contendo Co/Nb/Co. Na sequência apresentaremos os resultados obtidos para a família de válvula de spin contendo NiFe/Nb/NiFe. Focalizaremos também a mudança na  $T_c$  entre as amostras com buffer de Ta e *buffer* de Nb, o efeito Meissner Paramagnético e os vórtices incomuns presentes nesta família para espessuras maiores da camada SC de Nb.

### 4.1 Família de Válvula de *Spin* com Co/Nb/Co

Inicialmente, estudamos as válvulas de *spin* da família *Co/Nb/Co*, realizando uma análise estrutural baseado na difração e refletividade de raios-X. Logo analisamos o comportamento elétrico das amostras com respeito à temperatura, para verificar quais delas apresentam uma transição supercondutora. Finalmente, examinamos o comportamento magnético em diferentes valores de temperatura.

### 4.1.1 Difração de Raios-X: propriedades estruturais

Os resultados da análise estrutural são baseados nas medidas de difração (alto ângulo) e reflectividade (baixo ângulo) de raios-X; estas medidas foram obtidas no laboratório de raios-X do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas. A figura 4.1 mostra os padrões de difração para três diferentes amostras do sistema Si/IrMn(150 Å)/Ta(150 Å)/Co(50 Å)/Nb( $d_{SC}$ )/Co(50 Å)/Ta(50 Å) (válvula de spin *bottom*), com diferentes espessuras da camada SC de Nb. Segundo estes padrões de difração, podemos observar picos com diferentes intensidades, próprios dos materiais que constituem as camadas destas válvulas de *spin*.

Como mostra a figura 4.1, o pico com maior intensidade ( $2\theta = 36, 41^\circ$ ) corresponde a dois materiais presentes no sistema, Nb e  $\alpha$ -Ta. Como é esperado, o Nb apresenta uma orientação preferencial em (110) com uma fase estrutural *bcc* [88]. Além disso, é possível observar que ao aumentar a espessura do Nb a intensidade do pico também aumenta com todos os padrões estruturais se aproximando ao Nb tipo bulk [41].

Alguns padrões estruturais das camadas de Ta apresentam um pico de difração no mesmo ângulo do Nb ( $2\theta = 36, 41^\circ$ ), para este caso o Ta mostra uma fase estrutural *bcc*, ou fase  $\alpha$ -Ta, com orientação preferencial em (110). Junto com a fase  $\alpha$ -Ta, uma segunda fase estrutural conhecida como  $\beta$ -Ta é observada no ângulo  $2\theta = 33, 21^\circ$ , para a qual o pico correspondente é de menor intensidade do padrão de difração; esta fase tem uma orientação preferencial (002) apresentando uma estrutura de tipo tetragonal [89].

Com respeito às camadas FM, observamos dois picos correspondentes ao Co ( $2\theta = 44, 37^\circ$  e  $2\theta = 51, 40^\circ$ ), que apresentam duas orientações preferenciais em (111) e (200) com fase estrutural *fcc* [90]. Estes valores concordam com os padrões cristalográficos encontrados nas bases de dados da *Crystallography Open Database* (COD) [88, 91, 92]. Os picos restantes ( $2\theta = 42, 62^\circ$  e  $49, 50^\circ$ ) correspondem à camada AFM de IrMn. Esta camada tem uma fase estrutural *fcc* (similar ao Co) com orientações preferenciais (111) e (200) [93, 94]. Por outro lado, ao comparar os padrões de difração para amostras com espessura diferente na camada de Nb encontramos que enquanto o pico correspondente ao Nb aumenta sua intensidade com a espessura das camadas, os picos correspondentes ao IrMn e ao Co aparentemente diminuem de intensidade. Já que as espessuras destas camadas permanecem constantes para todas as amostras, provavelmente ocorrem modificações na cristalinidade, rugosidade e na quantidade de imperfeições e impurezas geradas no processo de deposição.

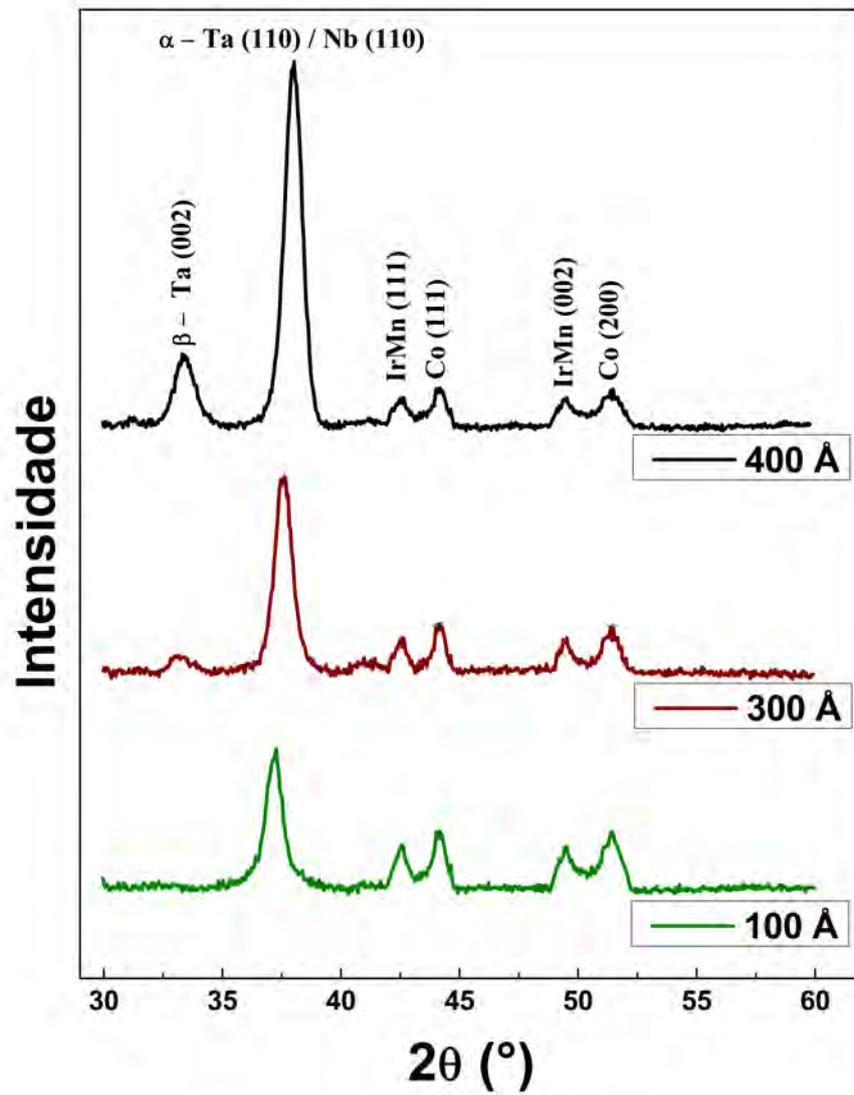


Figura 4.1: Padrões de difração de raios-X para as válvulas de spin *bottom* Si/Ta(150 Å)/IrMn(150 Å)/Co(50 Å)/Nb( $d_{SC}$ )/Co(50 Å)/Ta(50 Å), para diferentes valores de espessura da camada Nb (100, 300 e 400 Å).

Para determinar os valores reais das espessuras das camadas depositadas em cada amostra é necessário determinar a rugosidade de cada camada. Para isto, usamos as medidas de raios-X em baixo ângulo ou medidas de refletividade. Estes valores são calculados usando o programa WINGIXA [95], sendo limitado pela eventual saturação dos filtros e fendas usadas no equipamento de raios-X para cada medida.

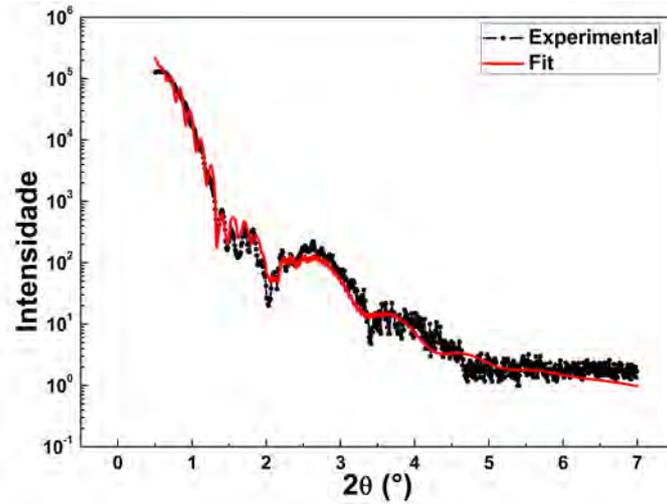


Figura 4.2: Refletividade de raios-X e seu respectivo ajuste (*Fit*) usando o programa WINGIXA para a válvula de spin *bottom* Si/Ta(150 Å)/Co(50Å)/Nb(300 Å)/Co(50 Å)/IrMn(150 Å)/Ta(50 Å).

A figura 4.2, apresenta a comparação entre uma medida de refletividade e o ajuste (*Fit*) obtido com o programa WINGIXA; os valores de espessura e rugosidade das camadas são registrados em diferentes tabelas, dependendo da análise buscada. Para as camadas de Ta e IrMn os valores registrados na tabela 4.1 são definidos por um valor médio de cada material das amostras, uma vez que seus valores são constantes e não são afetados diretamente pela mudança da camada separadora (Nb).

Camada	Espessura (Å)	Rugosidade (Å)
Ta ( <i>Buffer</i> )	$152,4 \pm 1,8$	$9,8 \pm 0,5$
IrMn (AFM)	$152,2 \pm 1,5$	$5,4 \pm 0,8$
Ta ( <i>capping</i> )	$52,9 \pm 0,7$	$1,8 \pm 0,3$

Tabela 4.1: Espessura e rugosidade das camadas *buffer*, AFM e *capping layer* das válvulas de spin *bottom* Si/Ta/IrMn/Co/Nb/Co/Ta.

Usaremos esses resultados para comparar as válvulas de spin com tricamadas *Co/Nb/Co*, consideradas com a estrutura FM1/SC/FM2, indicando a camada FM1 como camada presa (em contato

com a camada AFM), a camada FM2 como a camada livre, e a camada de Nb como a camada separadora SC, com espessura variável para cada amostra. A tabela 4.2 apresenta os valores de espessura ( $d$ ), rugosidade ( $h$ ) e o fator de erro ( $Xi^2$ ) para as amostras estudadas. Neste caso observamos que a medida que a espessura do Nb ( $d_{SC}$ ) aumenta, as rugosidades das camadas diminuem, isso é observado tanto para a camada SC ( $h_{SC}(Nb50 \text{ \AA}) = 12,5 \text{ \AA}$  e  $h_{SC}(Nb500 \text{ \AA}) = 2,1 \text{ \AA}$ ), como nas camadas FM (por exemplo os valores das camadas FM2,  $h_{FM2}(Nb50 \text{ \AA}) = 8,1 \text{ \AA}$  e  $h_{FM2}(Nb500 \text{ \AA}) = 2,8 \text{ \AA}$ ). Isso pode ser causado pelo tipo de deposição das camadas, que com o aumento da espessura pode mudar o modo de crescimento em ilhas (baixas espessuras), passando a um modo mais homogêneo (crescimento por camadas), e finalmente ser depositadas em uma combinação dos dois modos quando a espessura é muito grande.

Sistema	$d_{FM1}$ (Å)	$h_{FM1}$ (Å)	$d_{SC}$ (Å)	$h_{SC}$	$d_{FM2}$ (Å)	$h_{FM2}$ (Å)	$Xi^2$
Co/Nb(50 Å)/Co	55,3	6,3	50,3	12,5	51,4	8,1	0,8
Co/Nb(100 Å)/Co	49,3	6,02	103,3	12,5	48,4	9,1	0,8
Co/Nb(150 Å)/Co	51,8	6,4	154,4	9,7	55,4	8,8	0,7
Co/Nb(200 Å)/Co	52,2	5,5	203,3	7,3	52,4	5,2	0,5
Co/Nb(250 Å)/Co	48,3	7,02	247,3	6,5	49,4	5,3	0,8
Co/Nb(300 Å)/Co	50,7	5,3	312,3	6,5	47,8	5,1	0,6
Co/Nb(400 Å)/Co	50,2	3,9	407,3	4,1	50,4	3,5	0,5
Co/Nb(500 Å)/Co	48,9	3,5	497,3	2,1	49,4	2,8	0,7

Tabela 4.2: Espessuras ( $d$ ) e rugosidades ( $h$ ) das camadas FM1 (camada presa), SC (camada separadora supercondutora), FM2 (camada livre) das válvulas de *spin bottom*  $Si/Ta/IrMn/Co/Nb/Co/Ta$  calculadas pelo programa WINGIXA. O parâmetro  $Xi^2$  indica o erro da medida de cada amostra.

Por outro lado, também podemos comparar os dois tipos de válvulas de *spin* (*top* e *bottom*) para um mesmo valor de espessura da camada SC. Na tabela 4.3 observamos que os valores de espessura entre os dois tipos de válvulas são próximos, mas a rugosidade é diferente (aproximadamente 9%). Isto pode gerar diferenças nas medidas magnéticas por causa do acoplamento de casca de laranja de Néel exposto na seção 1.4.1.

Camada	$d_{Top}$ (Å) $\pm 0,6$	$h_{Top}$ (Å) $\pm 0,6$	$d_{Bottom}$ (Å) $\pm 0,8$	$h_{Bottom}$ $\pm 0,8$
Ta ( <i>buffer</i> )	156,9	9,6	155,7	8,7
IrMn (AFM)	162,1	3,4	156,2	4,3
Co (FM1)	48,7	5,1	49,3	6,02
Nb (100 Å)	102,7	10,5	103,3	12,5
Co (FM2)	49,8	5,6	48,4	9,1
Ta ( <i>capping</i> )	47,9	1,8	45,7	1,8

Tabela 4.3: Comparação dos valores de espessuras ( $d$ ) e rugosidades ( $h$ ) das válvulas de *spin top* e *bottom*.

### 4.1.2 Medidas de Transporte Elétrico

Usamos a técnica dos quatro pontos já apresentada na subseção 2.3.2 para medir a resistência em função da temperatura das válvulas de *spin*, buscando determinar quais amostras apresentam uma transição supercondutora. Para definir os valores  $T_c$  das amostras que apresentam transição supercondutora, tomamos as medidas de cada amostra e calculamos a derivada da resistência em função da temperatura  $\frac{dR}{dT}$ ; o gráfico resultante apresenta um pico que define a transição da resistência em relação com a temperatura. A temperatura na qual se encontra o valor máximo deste pico corresponde ao valor da  $T_c$ , como é mostrado na figura 4.3.

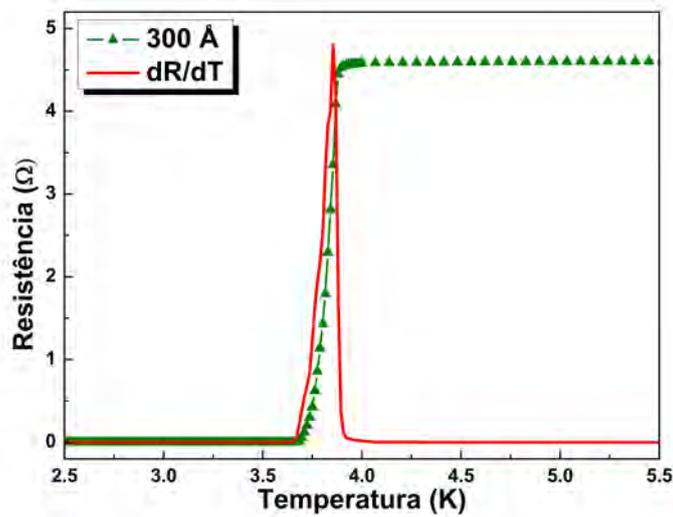


Figura 4.3: Uso da derivada da resistência para calcular o valor da  $T_c$  ( $T_c \approx 3,8$  K) para as válvulas de *spin bottom* Si/Ta/IrMn/Co/Nb/Co/Ta, com  $d_{SC} = 300$  Å.

Os resultados encontrados nas medidas de transporte, figura 4.4(a), mostram que as amostras com valores de espessura abaixo de  $200$  Å da camada separadora de Nb, não apresentam uma transição supercondutora, portanto podem ser consideradas válvulas de *spin* normal. Para as amostras com valores de espessura  $d_{SC}$  maiores, o valor da  $T_c$  aumenta com o incremento da espessura da camada SC ( $d_{SC}$ ) nas válvulas de *spin top* e *bottom*, como mostra a figura 4.4(b), indicando um valor crítico de espessura  $d_{SC}^{cr} \approx 150$  Å. A variação da  $T_c$  para os dois tipos de válvulas de *spin* (*top* e *bottom*) tem o mesmo comportamento e quase o mesmo valor de  $T_c$ . Assim, o comportamento da camada supercondutora de Nb depende apenas da sua espessura, não sendo alterado pela estruturada válvula de *spin*.

Comparando nossos resultados com os trabalhos de Moraru e Potenza [10, 58], figura 4.4 para válvulas de *spin* do tipo *top*, encontramos semelhanças no comportamento da  $T_c$  em função de  $d_{SC}$ , embora com certo desvio para espessuras maiores. Isto pode ser devido a fatores de tipo estrutural como rugosidade, imperfeições e impurezas das camadas geradas durante o processo de deposição. Por outro lado, estes resultados são encontrados também em sistemas híbridos FM/SC/FM estudados

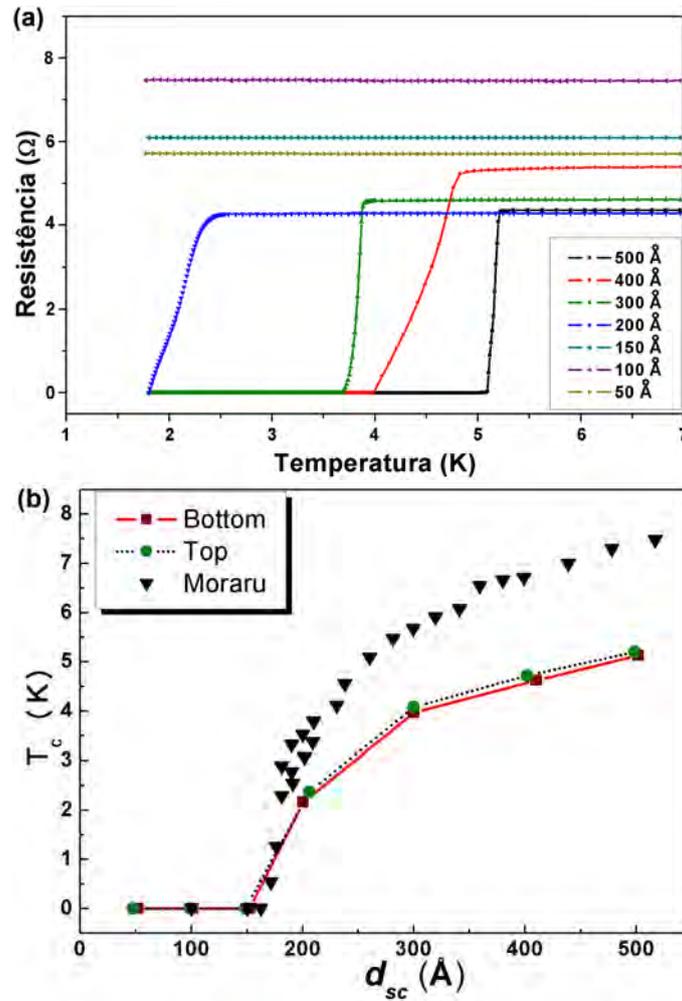


Figura 4.4: (a) Resistência em função da temperatura para as válvulas de *spin bottom*; observa-se a transição supercondutora a partir de  $d_{SC} = 200$  Å. (b) Temperatura crítica  $T_c$  em função da  $d_{SC}$  para válvulas de *spin top* e *bottom* comparadas com os resultados do trabalho de Moraru [10].

por Rusanov e colaboradores [96], apresentando valores críticos de  $d_{SC}$  muito parecidos com nossos resultados (140 Å).

### 4.1.3 Medidas de Magnetização

O comportamento magnético desta família de amostras é estudado a partir das curvas de histerese medidas usando o *PPMS-DinaCool* na opção VSM na faixa de 2-20 K, com o objetivo de investigar as possíveis mudanças do comportamento magnético das amostras na região de temperatura onde a camada de Nb apresenta supercondutividade. Para os valores maiores de temperatura nesta faixa de estudo, o comportamento das amostras é próprio de uma válvula de *spin* convencional, figura 4.5.

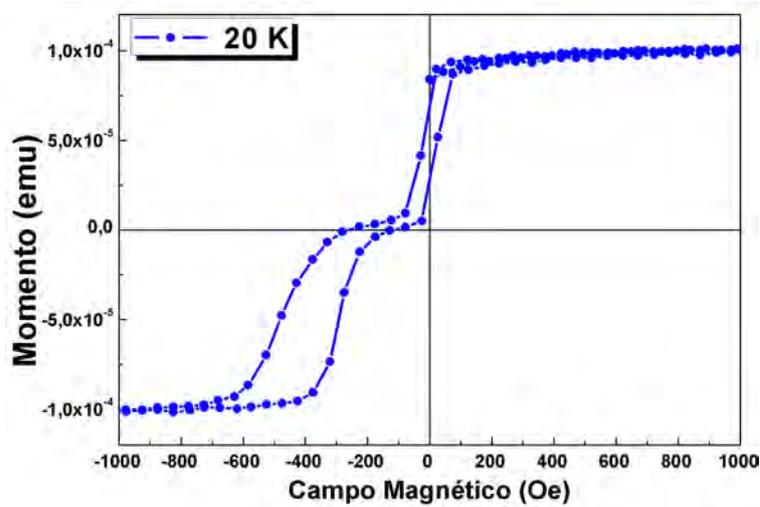


Figura 4.5: Resposta magnética da válvula de *spin bottom* Ta/IrMn/Co/Nb(100 Å)/Co/Ta em 20 K.

Para comparar o comportamento de duas amostras de válvula de *spin*, uma *top* e outra *bottom* com a mesma espessura  $d_{SC}$ , escolhemos  $d_{SC} = 100$  Å. Analisamos as curvas de histerese de duas amostras a uma temperatura fixa determinada, por exemplo  $T = 5$  K, levando em conta que para este tipo de amostra não temos transição supercondutora. Na figura 4.6, podemos observar que o comportamento magnético é típico de uma válvula de *spin*, mas encontramos diferenças nos momentos de saturação magnética e largura das curvas de histerese das camadas FM, onde podemos calcular diferenças no campo coercitivo ( $H_c$ ) e nos campos de *exchange bias* ( $H_{eb}$ ).

Para obter os valores de saturação magnética, calculamos o valor médio do momento magnético na região de saturação (valores de campo grandes em cada curva de histerese), para diferentes temperaturas (2 – 20 K); estes valores, registrados na figura 4.7, mostram que a saturação para a válvula *Top* é menor do que a medida para a válvula *bottom*, apresentando uma diferença de 9,7% entre as duas medidas. Esta diferença é peculiar, já que esperamos que as espessuras das camadas sejam aproximadamente iguais para amostras nas quais foi mudada a ordem de deposição. Porém, a

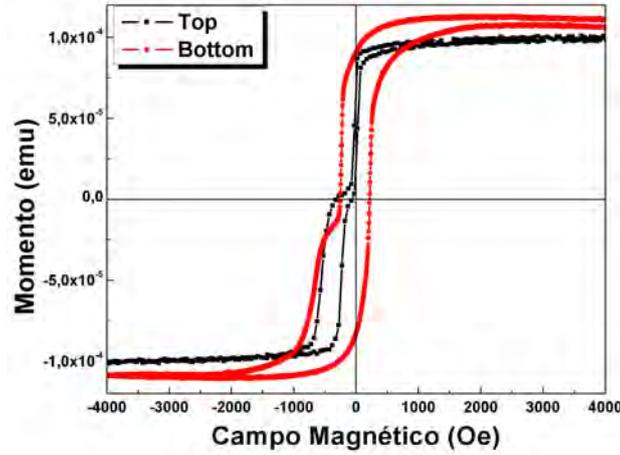


Figura 4.6: Curvas de histerese de válvulas de *spin top* Si/Ta/Co/Nb( $d_{SC}$ )/Co/IrMn/Ta e *bottom* Si/Ta/IrMn/Co/Nb( $d_{SC}$ )/Co/Ta com  $d_{SC} = 100 \text{ \AA}$  a 5 K.

espessura nas duas camadas magnéticas é cerca de 9% maior na válvula de *spin bottom* (tabela 4.3) o que poderia explicar a diferença dos valores de magnetização entre os dois tipos de amostras.

Para poder obter os valores dos campos de  $H_{eb}$  e  $H_c$ , usamos o método de calcular uma derivada em cada laço da histerese. A figura 4.8 mostra a curva de histerese para a válvula de *spin top* com as derivadas nos dois laços das curvas. Os picos de cada curva da derivada  $dM/dH$  correspondem a  $H_1$  e  $H_2$ . Usando as equações 1.9 e 1.10<sup>1</sup> calculamos os valores de  $H_{eb}$  e  $H_c$  para cada curva de histerese medida e os resultados estão indicados na figura 4.9<sup>2</sup>.

<sup>1</sup> $H_c = (H_2 - H_1) / 2$  e  $H_c = |H_1 + H_2| / 2$

<sup>2</sup>Devemos levar em conta que as oscilações estão acima do erro valor do campo magnético medido no equipamento usado ( $\sim 0,01\%$ ).

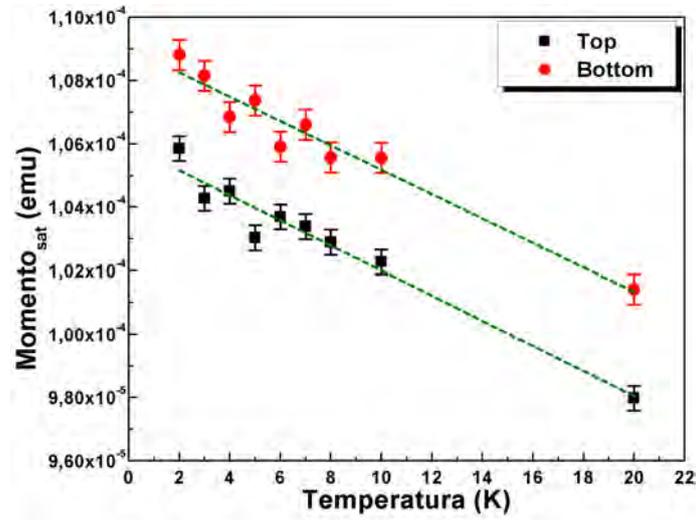


Figura 4.7: Curvas de saturação magnética em função da temperatura para os dois tipos de amostras *top* e *bottom* com  $d_{SC} = 100 \text{ \AA}$ .

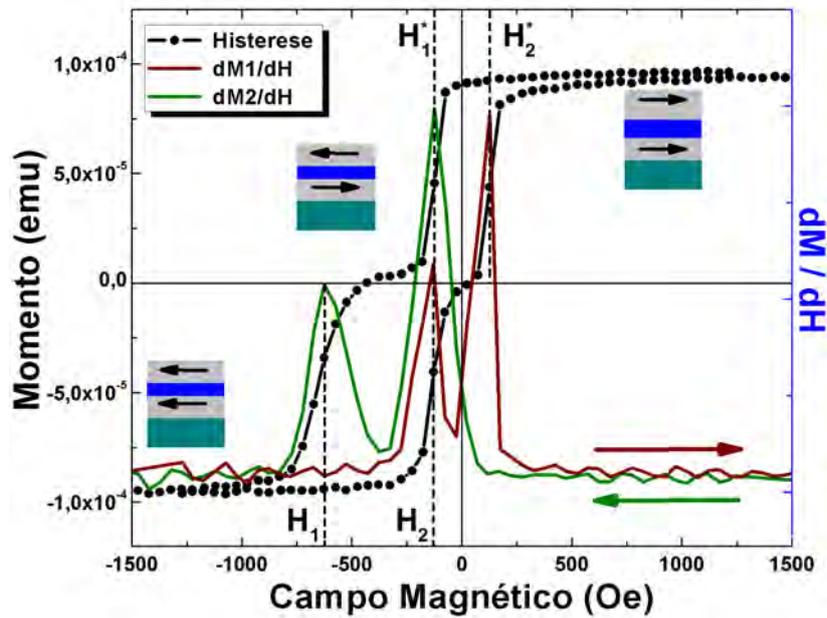


Figura 4.8: Curva de histerese e sua derivada usada para calcular os valores de campo  $H_{eb}$  e  $H_c$  da válvula de *spin top* com  $d_{SC} = 100 \text{ \AA}$ . As setas com a mesma cor das curvas derivadas indicam a direção de cada laço na curva de histerese. Também se pode observar as configurações das camadas FM dependendo do valor do campo magnético.

Os valores de campo de  $H_{cb}$  e  $H_C$ , mostrados na figura 4.9, apresentam comportamentos semelhantes com a temperatura para as válvulas de *spin top* e *spin bottom*, revelando um aumento para baixas temperaturas com algumas oscilações. O aumento do campo coercitivo com a diminuição da temperatura pode ser atribuído a uma estabilidade dos estados metaestáveis na ausência das flutuações térmicas. Esta ausência de flutuações também causa uma diminuição significativa na intensidade das transições entre os diferentes estados magnéticos.

O campo  $H_{cb}$  é maior para a amostra *spin top*, enquanto que  $H_C$  é maior para amostra *spin bottom*, como já foi mostrado na comparação das duas curvas de histerese na figura 4.6. A diferença entre os valores de campo entre estas duas amostras se encontra em uma taxa de 50% a 80% (tem uma diferença de 160 a 200 Oe entre as medidas). Os resultados, para os dois tipos de válvula apresentam uma anomalia tipo pico mais pronunciado na faixa de 5 K; este máximo é observado para todas as espessuras e para ambos os tipos de válvulas de *spin*. Provavelmente um pico desse tipo deve estar associado a uma transição magnética nesta faixa de temperatura, pois pelos valores envolvidos não pode ser devido a algum problema de termalização.

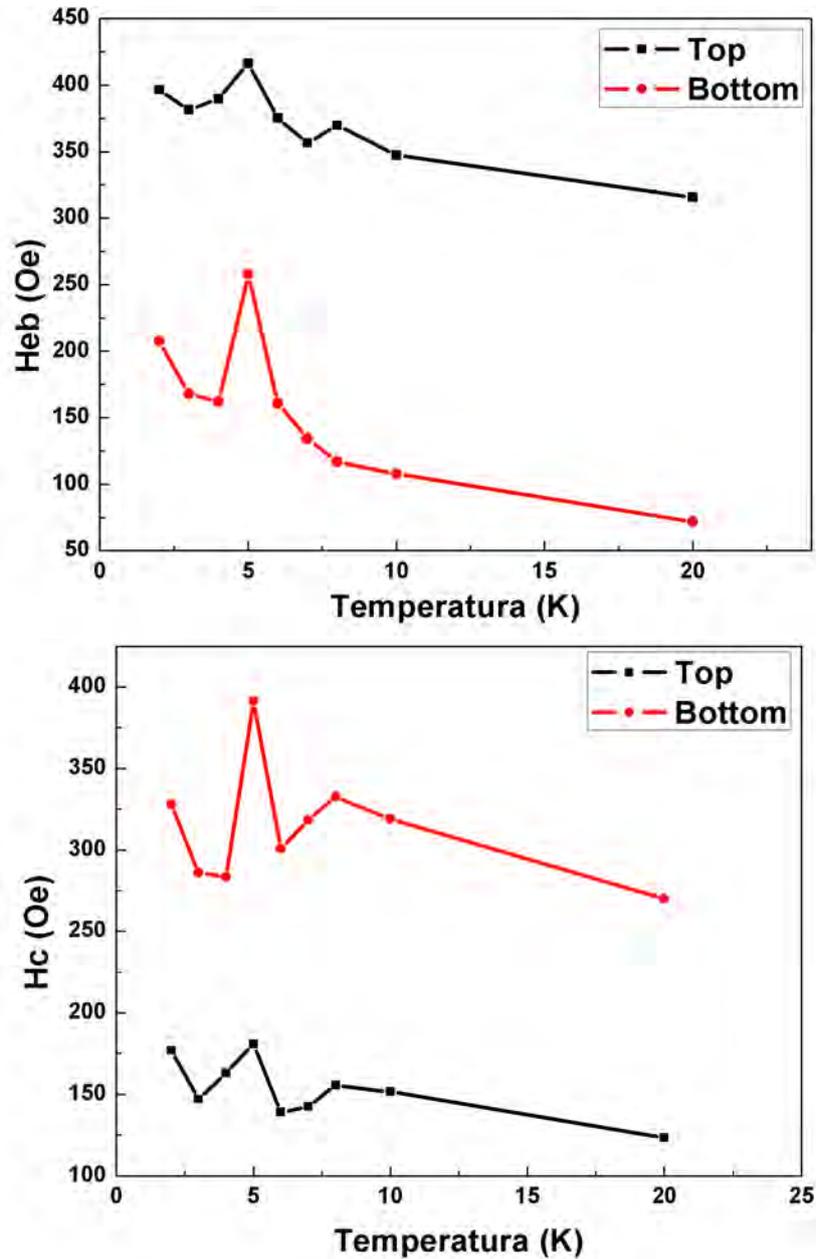


Figura 4.9: Comparação das curvas de campo de  $H_{eb}$  e  $H_c$  em função da temperatura para as válvulas de *spin top* e *spin bottom* da família Co/Nb/Co com  $d_{SC} = 100 \text{ \AA}$ , mostrando um comportamento similar para as duas grandezas, porém com diferentes valores absolutos. Note que  $H_{eb}$  é maior para a válvula de *spin top* enquanto que  $H_c$  é maior para amostras *spin bottom*.

O comportamento magnético de cada amostra depende também da espessura da camada separadora ( $d_{SC}$ ). Assim, agora vamos comparar os resultados de algumas amostras desta família com diferentes espessuras da camada separadora  $d_{SC}$ . A figura 4.10 apresenta as curvas de histerese correspondentes às amostras com  $d_{SC} = 150, 300$  e  $400 \text{ \AA}$  em  $10 \text{ K}$  (na fase não supercondutora). Podemos observar diferenças na saturação e nos valores de  $H_c$  e  $H_{eb}$ , mostrando uma relação da reposta magnética com a espessura da camada separadora.

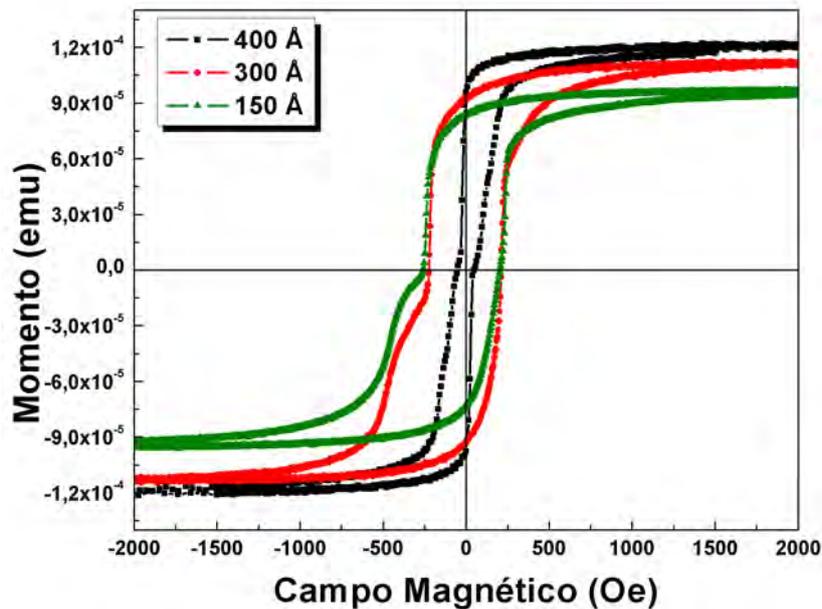


Figura 4.10: Curvas de histerese a temperatura de  $10 \text{ K}$  para as válvulas de *spin* com  $d_{SC} = 150, 300$  e  $400 \text{ \AA}$ .

Analisamos o comportamento da magnetização de saturação a partir da figura 4.11, onde encontramos que a saturação magnética tem a mesma tendência para uma válvula *spin top* e uma *spin bottom* (figura 4.7). Mas o valor de cada saturação tende a aumentar com a espessura da camada não magnética supercondutora  $d_{SC}$ , mas para algumas amostras esta tendência não se cumpre ( $d_{SC} = 100, 250 \text{ \AA}$ ).

Ao relacionar estes resultados com os valores da espessura  $d_{SC}$ , figura 4.12, observamos que apesar da tendência crescente da magnetização com a espessura da camada SC existe um comportamento destoante para as amostras com  $d_{SC} = 100, 250 \text{ \AA}$ , as quais apresentam valores de magnetização menores com respeito as outras amostras. Se observarmos os valores de rugosidade e espessura das camadas FM1/SC/FM2 na tabela 4.2, encontramos que a magnetização diminui para valores de rugosidade altos. Portanto, o comportamento das amostras  $d_{SC} = 100, 250 \text{ \AA}$  poderia ser atribuído à qualidade estrutural destas amostras. Em outras palavras, a diminuição na rugosidade provoca uma interdifusão baixa na interface das camadas levando a uma redução de momentos magnéticos não compensados (o acoplamento casca de laranja de Néel seria menor ao diminuir a rugosidade).

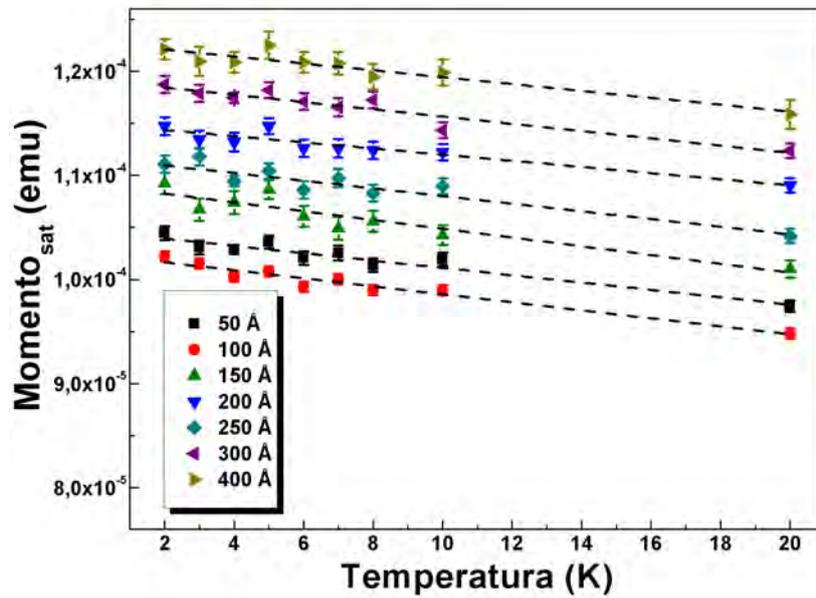


Figura 4.11: Momento magnético de saturação em função da temperatura para as válvulas de *spin bottom* Ta/IrMn/Co/Nb( $d_{SC}$ )/Co/Ta.

Comparando os valores da magnetização para as duas temperaturas, encontramos uma redução de 2 % para que a magnetização em 10 K em relação ao valor a 5K nas amostras com espessuras acima de 100 Å.

Para analisar os campos  $H_c$  e  $H_{eb}$  em função da temperatura apresentamos a respectiva curva para cada amostra *bottom* na figura 4.13 em um arranjo onde podemos comparar cada um destes campos separadamente. O comportamento é similar ao já apresentado para amostras (*spin top* e *bottom*) com  $d_{SC} = 100 \text{ \AA}$  (ver figura 4.9). Porém, aqui podemos observar que estes valores diminuem com o aumento da espessura  $d_{SC}$ . Este resultado poderia ser atribuído a um desacoplamento das camadas devido à separação gerada pela camada espaçadora não magnética. No entanto, para todas as amostras permanece o mesmo pico máximo de campo em 5 K encontrado para as amostras *top* e *bottom*. Este efeito poderia ser atribuído a uma transição magnética ocorrendo nesta temperatura<sup>3</sup>. Embora esta seja uma possível explicação da anomalia encontrada em 5 K seria recomendável fazer novas medidas utilizando um intervalo mais preciso de temperaturas próximo a 5 K.

<sup>3</sup>Também poderíamos considerar um detalhe na sequência de medida do *DinaCool*, no qual, o equipamento controla este tipo de flutuações.

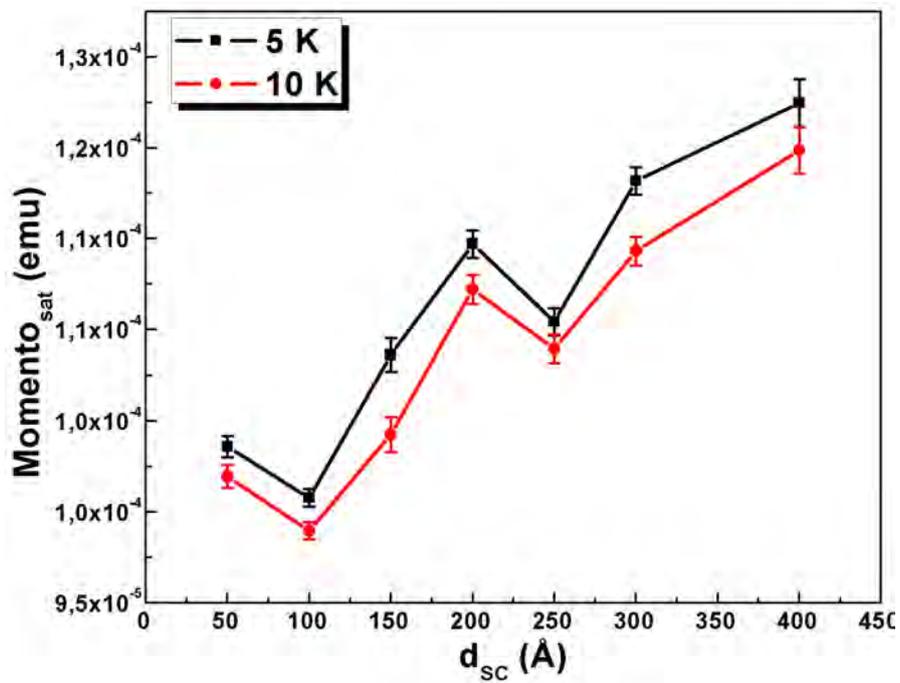


Figura 4.12: Magnetização em função da espessura  $d_{\text{SC}}$  em duas temperaturas diferentes (5 e 10 K) para as válvulas de *spin bottom* Ta/IrMn/Co/Nb( $d_{\text{SC}}$ )/Co/Ta.

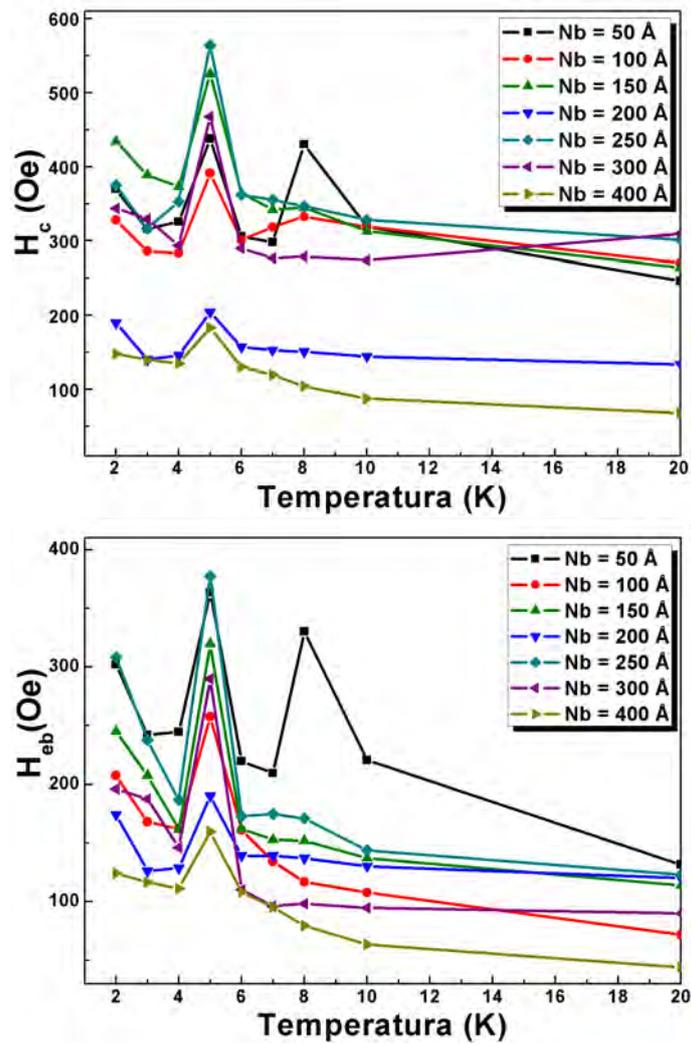


Figura 4.13: Campos  $H_c$  e  $H_{cb}$  em função da temperatura para amostras *bottom* com  $d_{SC} = 50, 100, 150, 200, 250, 300$  e  $400 \text{ \AA}$ . Podemos observar o mesmo comportamento em todas as amostras, mas com uma diminuição na intensidade.

Quando estudamos uma válvula de *spin* supercondutora (ou com a camada SC separadora com valores de espessura maiores do que a  $d_{SC}^{cr}$ ) abaixo da  $T_c$ , podemos observar que as amostras desta família não apresentam uma mudança significativa no seu comportamento magnético. Como é apresentado na figura 4.14 onde comparamos duas temperaturas diferentes de uma amostra com  $d_{SC} = 500 \text{ \AA}$  (2 e 10 K), as curvas de histerese são similares nas duas temperaturas com a diferença de uma transição a mais (ou laço adicional) na medida feita a 2 K. Devido à natureza magnética das camadas FM, sendo o cobalto considerado como um material magneticamente duro, a contribuição supercondutora fica blindada; com o isto, não conseguimos observar uma resposta própria de um sistema híbrido SC/FM. Para este caso, o laço adicional encontrado na histerese a 2 K pode ser atribuído a um nível de desordem magnética gerada pela mesma contribuição supercondutora, pois a fase supercondutora da camada SC pode estar modificando a orientação dos momentos magnéticos nas camadas FM; isto quer dizer que o acoplamento das camadas FM muda pelo efeito da supercondutividade. Este efeito pode se apresentar em todas as amostras com transição supercondutora, ou seja amostras com  $d_{SC} > 150 \text{ \AA}$ , como foi mostrado na figura 4.4, levando em conta que o efeito é mais evidente para amostras com  $d_{SC}$  grande. Mas se aumentamos muito a espessura da camada SC, corremos o risco de desacoplar as camadas FM.

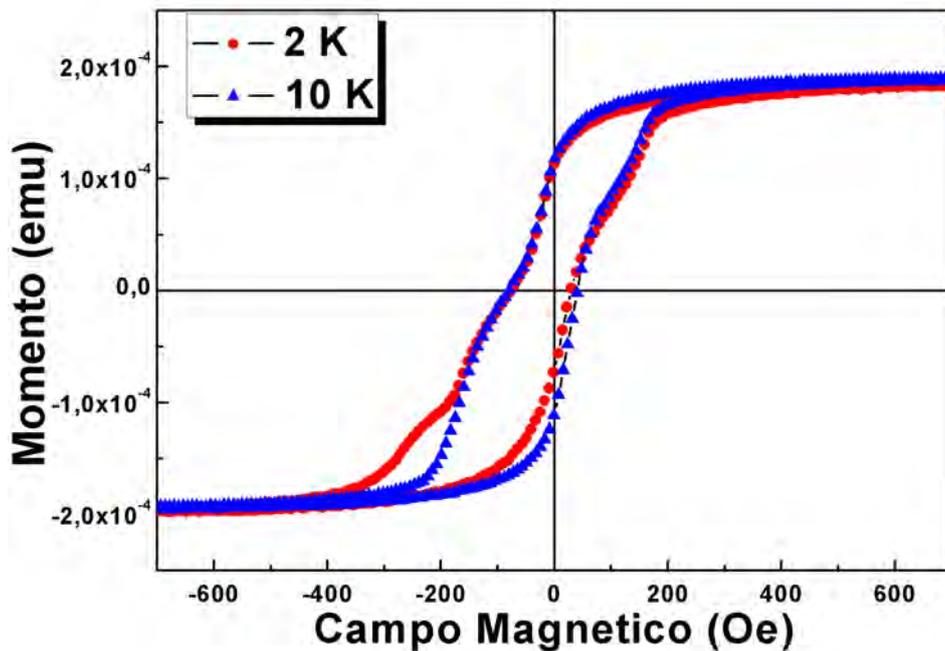


Figura 4.14: Curvas de histerese em temperaturas acima e abaixo de  $T_c$ , 10 e 2 K, respectivamente, para uma válvula de *spin* com  $d_{SC} = 500 \text{ \AA}$ .

## 4.2 Família de Válvula de *Spin* com NiFe/Nb/NiFe

Nesta seção, estudamos inicialmente a influência do material usado como camada *buffer* sobre o comportamento supercondutor; observamos mudanças na transição SC. Depois de estudar as características estruturais e elétricas das válvulas de *spin top* e *bottom*, apresentamos um resultado importante nessa seção, um estado não meta-estável paramagnético no sistema supercondutor. Esse comportamento exótico aparece a baixas temperaturas em amostras com camadas de Nb relativamente grossas ( $d_{\text{Nb}} \geq 300\text{\AA}$ ), quando os vórtices penetram fracamente na camada de NiFe.

### 4.2.1 Difração de Raios-X; propriedades estruturais

Apresentamos os resultados das medidas de difração (alto ângulo) e reflectividade (baixo ângulo) de raios-X para as amostras do sistema Si/Ta(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb( $d_{\text{SC}}$ )/NiFe(50 Å)/IrMn(150 Å)/Ta(50 Å) (válvulas de *spin Top*) e Si/IrMn(150 Å)/Ta(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb( $d_{\text{SC}}$ )/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å) (válvulas de *spin bottom*), mostrando diferentes valores de espessura na camada Nb (150, 300 e 400 Å). Para esta família de amostras podemos observar seis diferentes picos de difração correspondentes das camadas medidas das válvulas de *spin*.

Na figura 4.15, o pico correspondente à camada de Nb se localiza na posição  $2\theta \approx 38.405^\circ$ , com maior intensidade; isto indica que o Nb apresenta uma orientação preferencial em (110) com uma fase estrutural *bcc* [91].

Para esse mesmo pico da posição  $2\theta \approx 38,405^\circ$  o Nb tem padrões semelhantes ao Ta na fase  $\alpha$ -Ta, apresentando uma fase estrutural *bcc* (a mesma do Nb), mas com orientação preferencial em (002). A segunda fase estrutural chamada  $\beta$ -Ta, está localizada em  $2\theta \approx 33,21^\circ$  cujo pico correspondente é o menos intenso no padrão de difração de cada amostra. Esta fase também tem uma orientação preferencial (002), apresentando uma estrutura de tipo tetragonal [87, 89, 97]. É complicado definir as causas do crescimento das camadas de Ta na fase  $\alpha$  ou  $\beta$ , mas é possível encontrar que em muitos casos a presença de imperfeições e impurezas na deposição inibe a formação da fase  $\beta$ -Ta, o que pode levar a uma maior formação da fase  $\alpha$ -Ta. A fase  $\alpha$ -Ta pode ter uma maior variedade de parâmetros de rede do que a fase  $\beta$ , porque esta estrutura pode acomodar uma maior quantidade de imperfeições e impurezas sem alterar sua estrutura cristalina [87, 97]. Isso significa que parâmetros iniciais da deposição como a pressão de trabalho, o tempo de deposição, a potência das fontes usadas (DC ou RF) e a pressão de base (que determina o nível de impurezas presentes), possam mudar o número de imperfeições, além de gerar uma mudança de fase durante a própria deposição, ainda que possamos ter um controle destes parâmetros [98].

Os picos de difração correspondentes às camadas de NiFe ( $2\theta \approx 44,105^\circ$  e  $2\theta = 51,375^\circ$ ), indicam duas orientações preferenciais em (111) e (200), as quais estão relacionadas com a fase estrutural *fcc*, o que concorda com os padrões cristalográficos encontrados na literatura [99, 100]. Os picos restantes em  $2\theta \approx 42,525^\circ$  e  $2\theta \approx 49,465^\circ$  são correspondentes à camada AFM de IrMn, que tem uma fase estrutural *fcc* com orientações preferenciais (111) e (002) [93, 94] (similar ao NiFe).

No padrão de difração de raios-X das amostras *spin top* apresentados na figura 4.15(a), os picos de intensidade relacionados com as camadas FM e AFM se comportam da seguinte maneira: nas

amostras com menores espessuras ( $d_{SC} = 150 \text{ \AA}$ ), o pico associado à camada de IrMn apresenta uma maior intensidade para a orientação estrutural (111), que se encontra em  $2\theta \approx 42,5^\circ$ , comparados com os picos associados a fase estrutural (002) da mesma camada AFM. Os picos correspondentes às camadas de NiFe aumentam com  $d_{SC}$ ; a intensidade do pico com orientação preferencial (111) do IrMn diminui com  $d_{SC}$ , dando lugar ao aumento dos picos com orientação (002) para o IrMn e (200) para o NiFe, encontrados no intervalo  $2\theta = 49^\circ$  a  $52^\circ$ . Porém, o pico de NiFe relacionado com a orientação (111),  $2\theta \approx 44,5^\circ$ , se mantém com a mesma intensidade em todas as amostras.

Para as válvulas de *spin* tipo *bottom* (figura 4.15(b)) há um aumento da intensidade no pico correspondente à camada de Nb com sua espessura, ocorrendo também uma mudança na intensidade para os picos das camadas de IrMn e NiFe, diferente do que encontramos nas válvulas tipo *top*. Inicialmente, para a amostra com  $d_{SC} = 150 \text{ \AA}$  os picos mais intensos são das camadas de NiFe, com orientação preferencial (111) e (200), sendo a mesma encontrada nas válvulas *top*; os picos da camada IrMn também são observados ( $2\theta \approx 42,8^\circ$  e  $2\theta \approx 49,8^\circ$ ), mas estes têm uma intensidade menor. Para ângulos menores encontramos os picos do Nb junto com o  $\alpha - Ta$  ( $2\theta \approx 42,8^\circ$ ), e em menor intensidade, o  $\beta - Ta$  ( $2\theta \approx 42,8^\circ$ ). O pico correspondente à camada de Nb aumenta com sua espessura até ser o maior do padrão de difração para a amostra com  $d_{SC} = 400 \text{ \AA}$ , enquanto que a intensidade para os picos de NiFe e o IrMn (002) diminui gradualmente. No caso do pico de IrMn (111), a intensidade mostra um comportamento quase oscilatório, apresentando um valor máximo na amostra de  $d_{SC} = 300 \text{ \AA}$  para depois decrescer de novo nas amostras com  $d_{SC}$  maior.

Uma comparação das duas famílias *spin top* e *bottom* mostra que a família *top* exibe uma estrutura mais homogênea. Só a amostra de  $400 \text{ \AA}$  de Nb apresenta picos intensos para orientações de (002) e (200). Em todos os padrões de difração da família de válvulas de *spin* com NiFe-Nb-NiFe, podemos observar a presença do pico associado ao  $\beta - Ta$ , que aparentemente não muda de intensidade, o que indica que esta fase estrutural tem uma maior probabilidade de crescer nas amostras com camadas de NiFe, além de aumentar a intensidade dos picos do Nb quando a espessura deste se aproxima de uma estrutura de *bulk* [41].

Para determinar o nível de imperfeições presentes nas amostras, analisamos a espessura e rugosidade das camadas que constituem as válvulas de *spin* estudadas neste trabalho. Utilizamos o programa WINGIXA para poder calcular estes valores a partir das medidas de refletividade de cada amostra *spin top* e *bottom* [95], como mostra a figura 4.16. Os resultados serão importantes para discutir mais adiante o comportamento elétrico e magnético destas amostras.

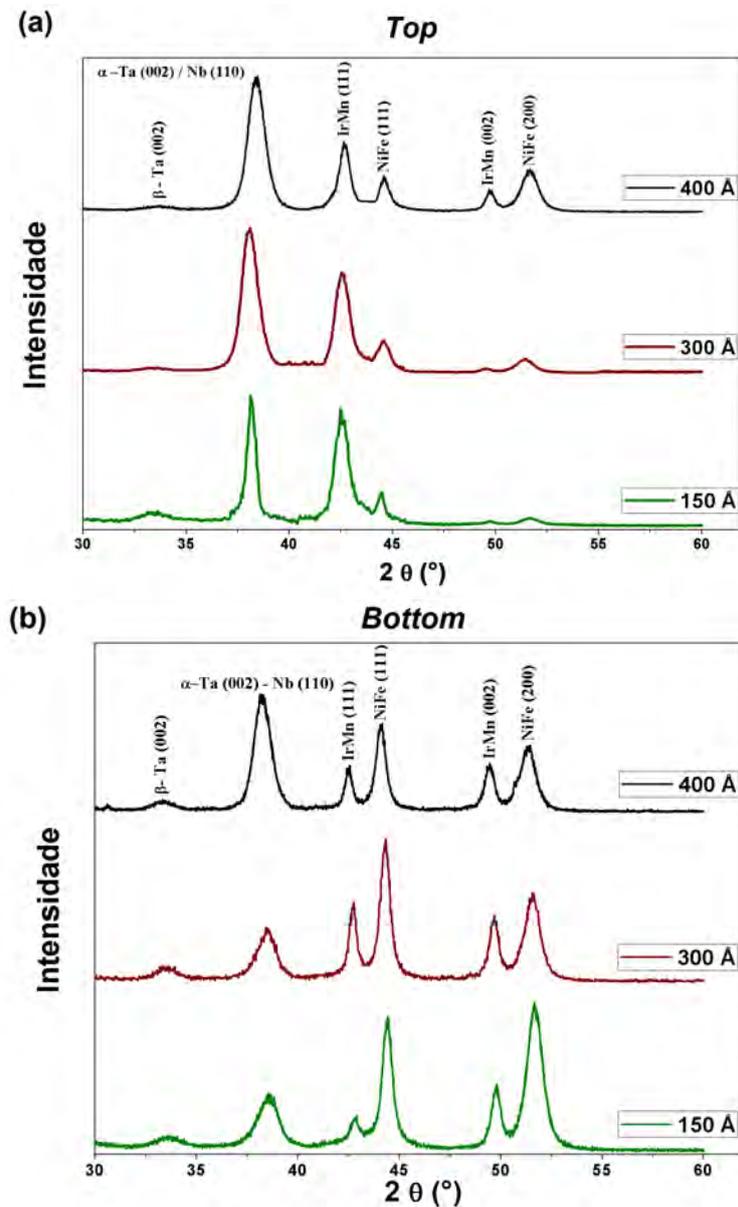


Figura 4.15: Padrões de difração de raios-X para as amostras dos sistemas: (a) Si/Ta(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb( $d_{SC}$ )/NiFe(50 Å)/IrMn(150 Å)/Ta(50 Å) (válvulas de spin *Top*), e (b) Si/IrMn(150 Å)/Ta(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb( $d_{SC}$ )/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å) (válvulas de spin *bottom*). São mostrados os padrões das amostras com diferentes valores de espessura da camada Nb (150, 300 e 400 Å).

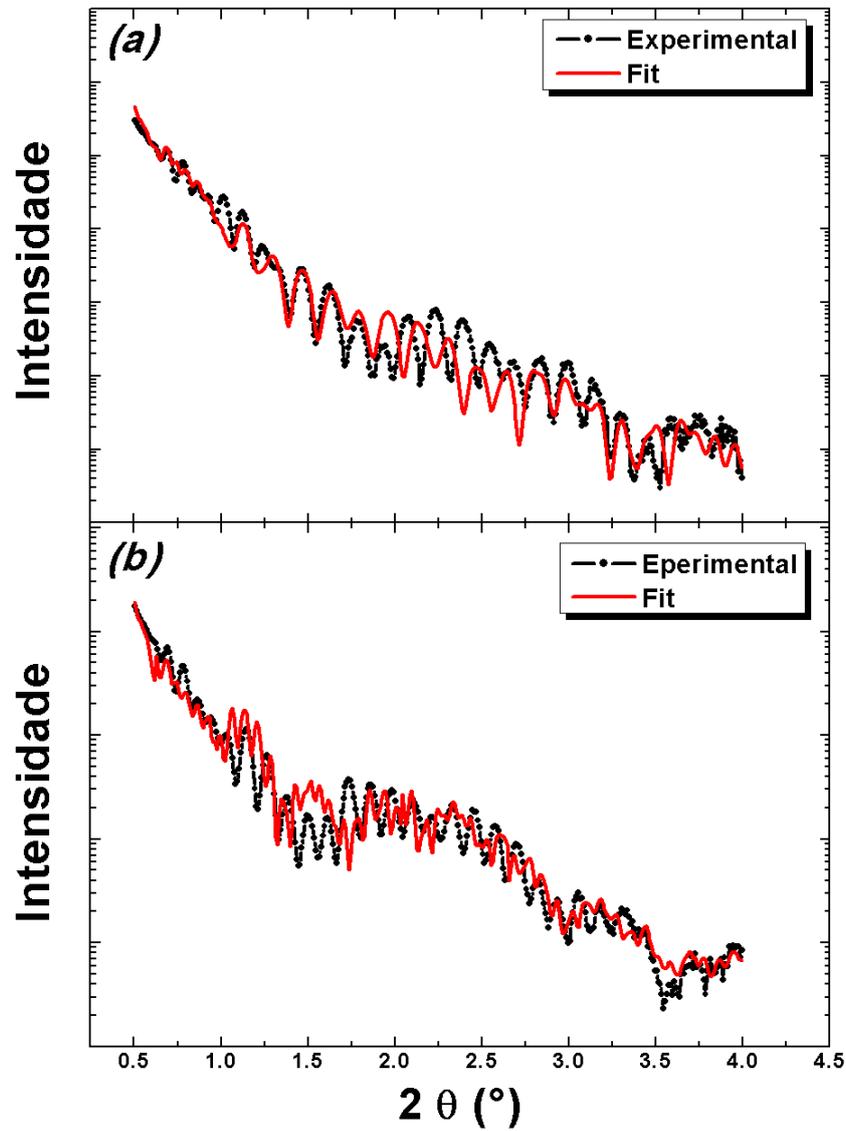


Figura 4.16: Curvas de refletividade experimental (linhas e pontos) e seus respectivos ajustes (linhas contínuas) dos sistemas de válvulas de *spin*: (a) *Top* Si/Ta(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb(400 Å)/NiFe(50 Å)/IrMn(150 Å)/Ta(50 Å) e (b) *Bottom* Si/IrMn(150 Å)/Ta(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb(400 Å)/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å).

Inicialmente, analisamos as válvulas de *spin top* desta família e separamos os valores encontrados para as multicamadas em duas tabelas. Na tabela 4.4 temos as camadas das válvulas de spin que ficam com valores de espessura relativamente constantes (camadas *buffer* de Ta, AFM de IrMn, e *capping* Ta). Como podemos ver, os níveis de rugosidade maiores correspondem à camada *buffer*, o que pode ser entendido já que a camada de Ta está em contato com o substrato, podendo ter uma grande quantidade de imperfeições e impurezas na sua superfície, além de ser a camada que garante um crescimento homogêneo das multicamadas. Para a camada AFM, temos um nível menor de rugosidade comparado com a camada *buffer*; estes valores são menores do que a espessura das camadas o que indica que temos um crescimento homogêneo. A rugosidade pode ter uma influência na interface AFM/FM1 (a camada FM1 é chamada de camada presa do sistema de válvulas de *spin*).

Camada	$d_x$ (Å)	$h_x$ (Å)
Ta ( <i>Buffer</i> )	$150,8 \pm 1,8$	$6,8 \pm 0,5$
IrMn (AFM)	$155,2 \pm 2,5$	$5,4 \pm 0,8$
Ta ( <i>capping</i> )	$51,1 \pm 0,7$	$1,8 \pm 0,3$

Tabela 4.4: Espessura ( $d_x$ ) e rugosidade ( $h_x$ ) das camadas *buffer*, AFM e *capping layer* das válvulas de *spin Top* Si/Ta/NiFe/Nb/NiFe/IrMn/Ta.

Para as camadas restantes (FM1, SC, FM2), analisamos seus valores como um sistema híbrido FM/SC/FM apresentados na tabela 4.5. Indicamos as colunas dos valores da camada livre como FM2 e a camada presa como FM1, dependendo do tipo de válvula de *spin*, lembrando que estes nomes estão ligados com o comportamento magnético e a proximidade com a camada AFM. Para este caso as válvulas de *spin* são *top*; portanto, primeiro temos os valores da camada FM2 e logo os valores da camada FM1. Como os valores  $d_{SC}$  correspondentes a espessura da camada de Nb são os únicos que variam nessas amostras, podemos notar que os níveis de rugosidade diminuem a medida que aumenta a espessura desta camada, o que pode modificar também a rugosidade da camada FM1, a qual está depositada sobre a camada SC. Também ocorre uma redução da rugosidade na camada FM2, que esta embaixo da camada SC, o que pode ser devido a um melhor crescimento das camadas ou uma acomodação da estrutura da camada FM2 com a cobertura de Nb.

Para as válvulas de *spin bottom*, como é mostrado na tabela 4.6, a camada AFM apresenta um nível de rugosidade maior comparada com a camada AFM das válvulas *top* (tabela 4.4), o que pode ser atribuído à localização da camada AFM na válvula de *spin*.

No caso da tricamada FM/SC/FM, tabela 4.7, a tendência se mantém em relação à diminuição das rugosidades, o que pode ser devido uma melhor qualidade das camadas sobre uma superfície mais homogênea.

Sistema	$d_{FM2}$ (Å)	$h_{FM2}$ (Å)	$d_{SC}$ (Å)	$h_{SC}$	$d_{FM1}$ (Å)	$h_{FM1}$ (Å)	$\bar{X}i^2$
NiFe/Nb(50 Å)/NiFe	52,5	8	50,5	10,1	51,4	9,6	0,83
NiFe/Nb(100 Å)/NiFe	51,3	7	103,4	9,9	52,3	9,3	0,63
NiFe/Nb(150 Å)/NiFe	53,5	4,6	156,3	7,2	57	5,9	0,48
NiFe/Nb(200 Å)/NiFe	52,7	5,3	212,3	6,5	50,8	5,1	0,72
NiFe/Nb(250 Å)/NiFe	51,4	5,3	249,9	6,2	53,3	5,5	0,52
NiFe/Nb(300 Å)/NiFe	52,4	3,1	300,4	5,3	54,9	4,8	0,62
NiFe/Nb(350 Å)/NiFe	57,4	2,4	351	2,2	56,9	2,2	0,55
NiFe/Nb(400 Å)/NiFe	53,2	2,6	403,5	4,4	54,4	2,99	0,84

Tabela 4.5: Espessuras ( $d$ ) e rugosidades ( $h$ ) das camadas FM2 (camada livre), SC (camada separadora SC), FM1 (camada presa) das válvulas de *spin top*  $Si/Ta/NiFe/Nb/NiFe/IrMn/Ta$  calculadas pelo programa WINGIXA.

Camada	$d_x$ (Å)	$h_x$ (Å)
Ta ( <i>Buffer</i> )	$150,2 \pm 1,3$	$6,5 \pm 0,2$
IrMn (AFM)	$157,3 \pm 0,7$	$7,6 \pm 1,1$
Ta ( <i>capping</i> )	$52,6 \pm 0,7$	$2,5 \pm 1,5$

Tabela 4.6: Espessura ( $d_x$ ) e rugosidade ( $h_x$ ) das camadas *buffer*, AFM e *capping layer* das válvulas de *spin bottom*  $Si/Ta/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta$ .

Sistema	$d_{FM1}$ (Å)	$h_{FM1}$ (Å)	$d_{SC}$ (Å)	$h_{SC}$	$d_{FM2}$ (Å)	$h_{FM2}$ (Å)	$\bar{X}i^2$
NiFe/Nb(50 Å)/NiFe	51,3	7	49	6,9	53	9,3	0,83
NiFe/Nb(100 Å)/NiFe	50,2	6,4	109	4,3	51,6	8,8	0,61
NiFe/Nb(150 Å)/NiFe	55,7	5,6	153,9	3,8	50,4	2,6	0,75
NiFe/Nb(200 Å)/NiFe	52,5	3,6	195,3	4	53,3	5,7	0,99
NiFe/Nb(250 Å)/NiFe	50,4	4,2	247,2	4,5	49,9	4,5	0,62
NiFe/Nb(300 Å)/NiFe	51,4	3	300,5	3,2	52,9	3,2	0,65
NiFe/Nb(350 Å)/NiFe	52,4	2,6	352,4	3,5	50,9	3,5	0,62
NiFe/Nb(400 Å)/NiFe	52,5	3	411	2,2	52,4	2,4	0,63
NiFe/Nb(500 Å)/NiFe	52,3	1	500,3	2,1	51,3	1,1	0,46

Tabela 4.7: Espessuras ( $d$ ) e rugosidades ( $h$ ) das camadas FM1, SC, FM2 das válvulas de *spin bottom*  $Si/Ta/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta$  calculadas pelo programa WINGIXA.

### 4.2.2 Medidas de Transporte Elétrico

Na figura 4.17, observamos os resultados das medidas de resistência em função da temperatura para os dois tipos de válvulas de *spin* [figura 4.17(a) para as amostras *spin top* e 4.17(b) para as *spin bottom*]. Observamos a ocorrência de supercondutividade nas amostras com um valor de espessura na camada de Nb acima de  $d_{SC} = 200 \text{ \AA}$ , com valores de  $T_c$  acima de 1,8 K. Estes resultados são semelhantes para os dois tipos de amostras (ver figura 4.18) e seguem os dados de Moraru [10]. Isto indica que a transição supercondutora tem um comportamento independente da ordem ou localização da camada AFM, resultado que é esperado, já que a camada AFM não deve afetar a  $T_c$  destas amostras. Os valores de  $T_c$  são calculados usando a derivada  $dR/dT$ , estes valores são apresentados na figura 4.18, e mostram o valor crítico de espessura  $d_{SC}^{cr} \approx 150 \text{ \AA}$ . Os valores da

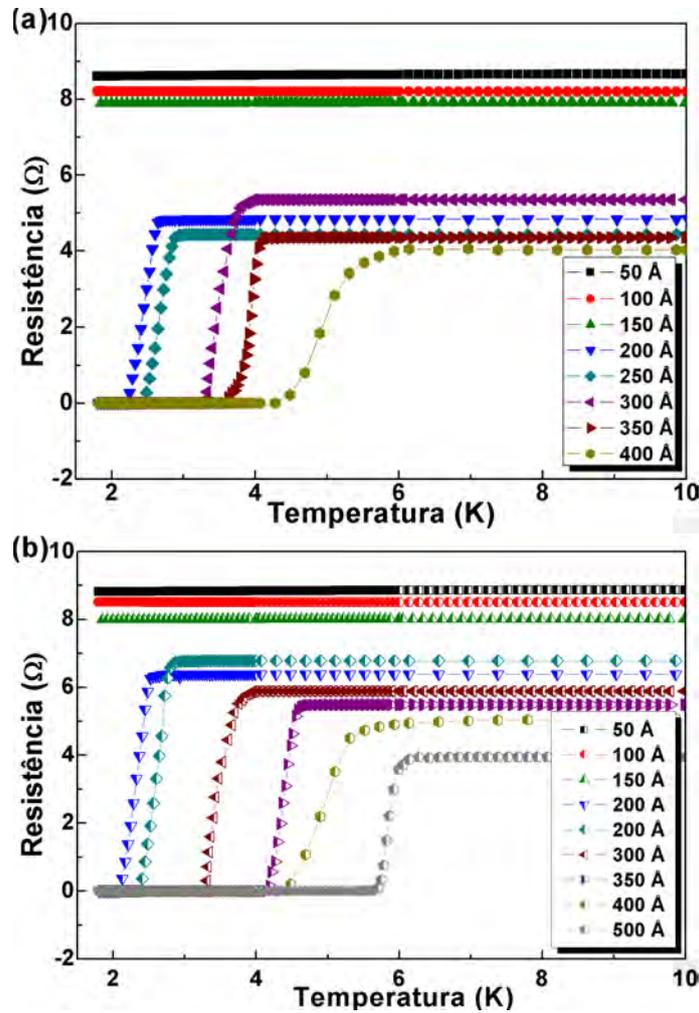


Figura 4.17: Resistência elétrica para as válvulas de *spin*: (a) *top* e (b) *bottom*. Observa-se a transição supercondutora a partir de  $d_{SC} = 200 \text{ \AA}$ .

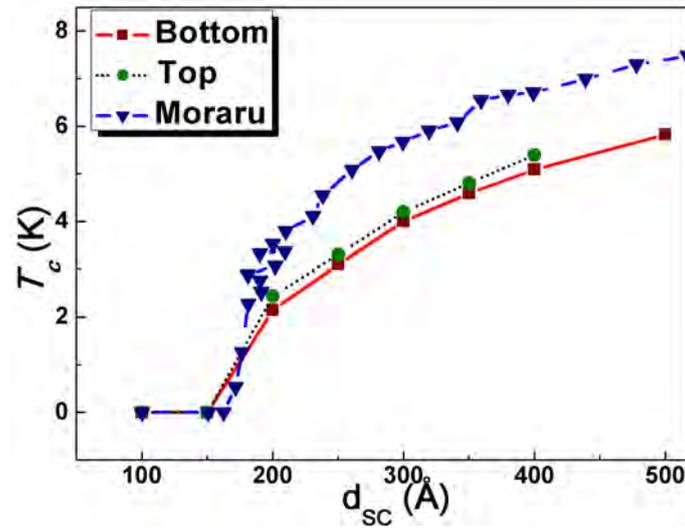


Figura 4.18: Temperatura crítica  $T_c$  em função da espessura da camada SC  $d_{SC}$  para válvulas de *spin top* e *bottom*. Os resultados do trabalho de Moraru [10] apresentam a mesma tendência.

$T_c$  entre dos dois tipos de válvulas de *spin* (*top* e *bottom*), apresentam o mesmo comportamento e quase o mesmo valor de  $T_c$ , com valor  $d_{SC}^{cr}$  próximo a  $\sim 150$  Å, de acordo com a literatura [10, 58]. O comportamento da camada SC de Nb não depende do tipo de válvula de *spin* estudada.

### 4.2.3 Medidas de Magnetização

Os resultados das medidas de magnetização para cada amostra desta família são analisadas nesta seção, para as válvulas de *spin top* e *bottom*, buscando revelar possíveis mudanças no comportamento magnético resultante do efeito *exchange bias* (campo coercitivo e de **exchange bias**) com a espessura da camada de Nb. Também estudamos o comportamento da magnetização na parte saturada de cada amostra e analisamos a contribuição supercondutora em amostras com espessura superiores à espessura crítica da camada SC  $d_{SC}^c$ . Faremos um estudo comparativo dos resultados para os dois tipos de válvulas de *spin top* e *bottom*.

Em primeiro lugar, apresentamos as medidas magnéticas comparando os dois tipos de válvula de *spin* na figura 4.19. Encontramos que as amostras com camada SC próximas à espessura crítica  $d_{SC}^c$  apresentam um comportamento típico de uma válvula de *spin* normal. Ao comparar os dois tipos de válvulas de *spin*, observamos que o comportamento magnético não depende da ordem das camadas AFM, porém ocorrem diferenças nos valores de magnetização e dos campos presentes nos laços relacionados com o efeito *exchange bias*.

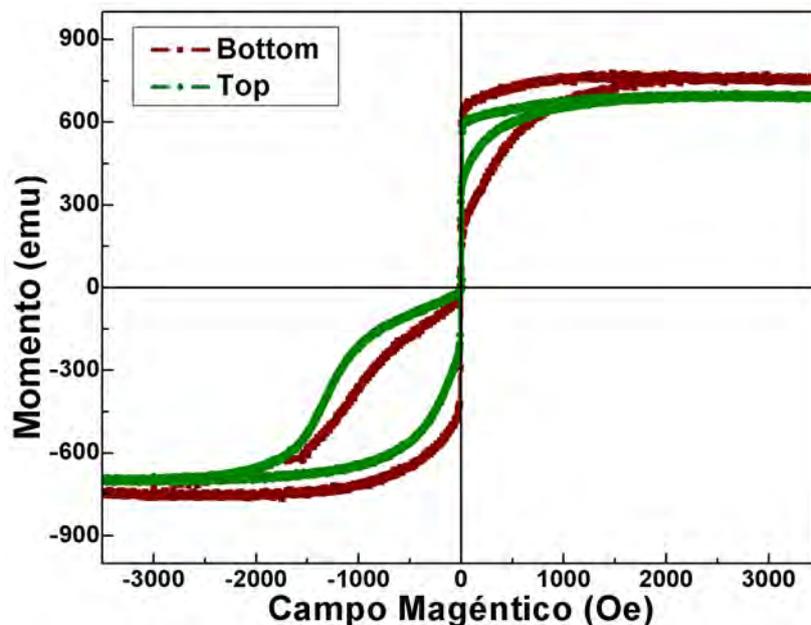


Figura 4.19: Curvas de histerese para as amostras com estruturas Si/Ta/NiFe/Nb(200 Å)/NiFe/IrMn (*Top*) e Si/Ta/IrMn/NiFe/Nb (200 Å)/NiFe (*Bottom*).

Nas medidas de algumas amostras aparece uma resposta magnética invertida, onde o laço correspondente à camada presa se encontra na zona positiva dos valores de magnetização e campo magnético, como é mostrado na figura 4.20. Este tipo de resultado é produto da colocação das amostras nos equipamentos de medida, quando o eixo fácil de magnetização está disposto de forma antiparalela ao campo magnético aplicado, acidentalmente, o que aparece em muitas medidas publi-

casas na literatura, por exemplo, os resultados nos trabalhos de Potenza e Dieny [58, 101]. Mas este tipo de mau posicionamento não interfere com o análise do comportamento magnético da amostra estudada.

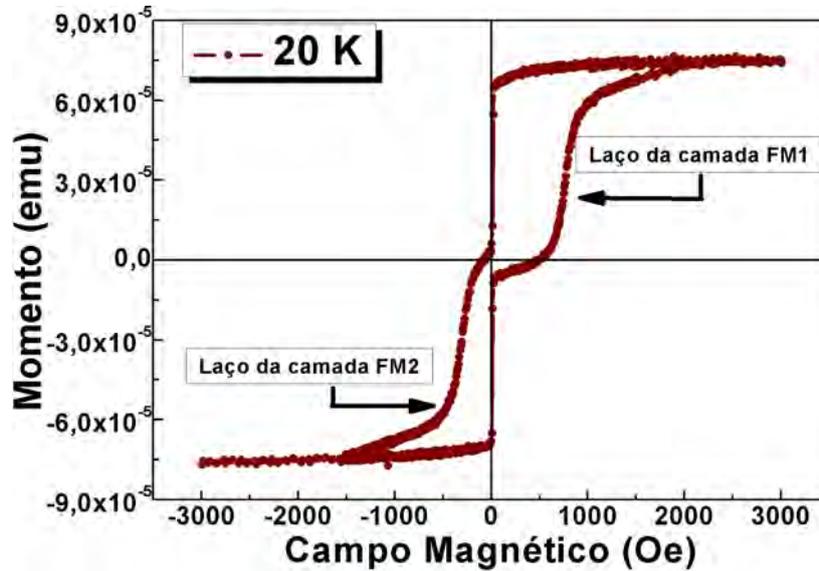


Figura 4.20: Curva de histerese da válvula de spin Ta/IrMn/NiFe/Nb (150 Å)/NiFe/Ta, aqui observamos uma resposta invertida. São indicados os laços da camada presa (FM1) e a camada livre (FM2).

As amostras com espessura da camada SC menores ( $d_{SC} < 300 \text{ \AA}$ ), não apresentam uma mudança no comportamento da resposta magnética com a diminuição da temperatura; como podemos observar na figura 4.21, o comportamento se mantém constante, mas podemos observar variações nos valores de campo  $H_{eb}$  e  $H_c$ , que mostraremos a seguir.

Amostras com espessuras maiores ( $d_{SC} > 300 \text{ \AA}$ ) apresentam uma mudança na curva de histerese para as temperaturas abaixo de  $T_c$ . Observando a figura 4.22 notamos que o comportamento magnético destas amostras é típico de sistemas híbridos SC/FM (em estado supercondutor) e analisaremos a contribuição SC destas amostras mais adiante. As curvas de histerese não apresentam uma forma simétrica o que pode ser devido ao acoplamento da camada AFM com a camada FM1, um resultado diferente daquele obtido com sistemas híbridos SC/FM relatados no trabalho anterior [70].

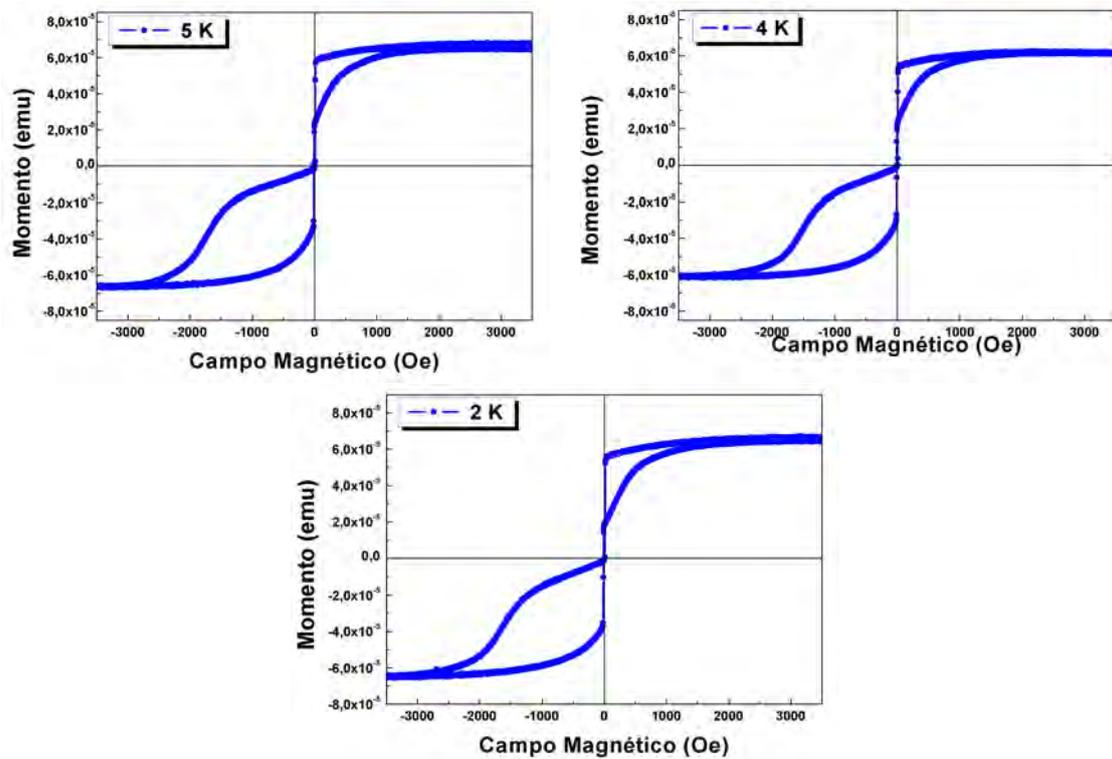


Figura 4.21: Curvas de histerese a baixas temperaturas da válvula de *spin top* Ta/NiFe/Nb (200 Å)/NiFe/IrMn/Ta ( $T_c \sim 2,5$  K) para  $T = 2, 4$  e  $5$  K .

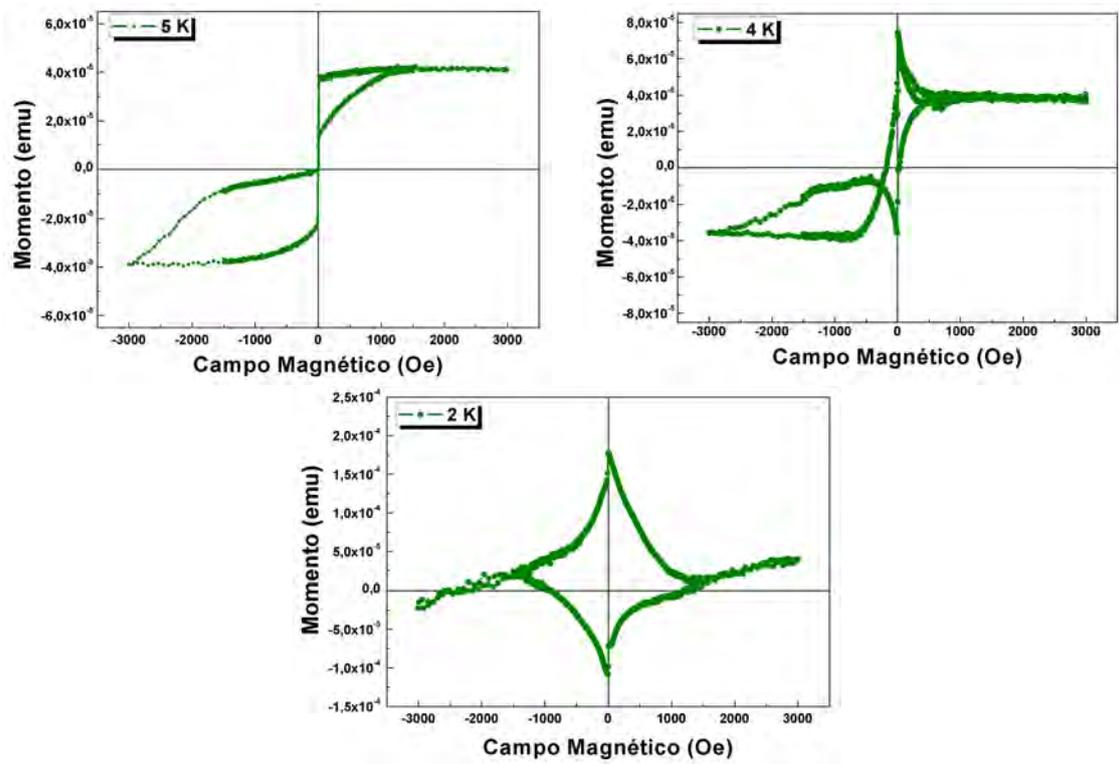


Figura 4.22: Curvas de histerese a baixas temperaturas da válvula de *spin top* Ta/NiFe/Nb (400 Å)/NiFe/IrMn/Ta, onde observamos uma transição no comportamento magnético de válvula de *spin* a um comportamento de sistema híbrido SC/FM.

#### 4.2.4 Influência da camada *buffer* nas propriedades magnéticas e supercondutoras das válvulas de *spin* IrMn/NiFe/Nb/NiFe

Enquanto muitos trabalhos sobre válvulas de spin supercondutoras estão focados na dependência da  $T_c$  e alinhamento entre as camadas FM, pouca atenção tem sido dedicada ao entendimento da influência da camada *buffer* nas propriedades magnéticas e supercondutoras destes sistemas, particularmente quando é usado Nb como camada *buffer*. No nosso trabalho comparamos duas amostras de válvula de *spin bottom* que têm a seguinte configuração: *buffer*/IrMn(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb(500 Å)/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å), onde usamos Ta(150 Å) ou Nb(150 Å) como camada *buffer*.

A análise de raios-X permite observar alguma mudança na estrutura cristalina ou grau de textura causada nas amostras pelas camadas *buffer* diferentes. Na figura 4.23 comparamos os espectros de difração das duas amostras estudadas com *buffer* de Ta e Nb e nos dois espectros podemos identificar os picos de difração localizados cerca de  $2\theta = 38,2^\circ$  atribuídos ao Nb *bcc* (110) e a algumas possíveis fases *bcc* que podem ocorrer nas camadas de Ta. Isto porque o Nb e o Ta apresentam estruturas *bcc*, com seu pico de maior intensidade próximo a posição angular  $2\theta \approx 38,305^\circ$ , com orientação (110). Porém a maior contribuição para estes picos de difração é dada pela camada separadora de Nb.

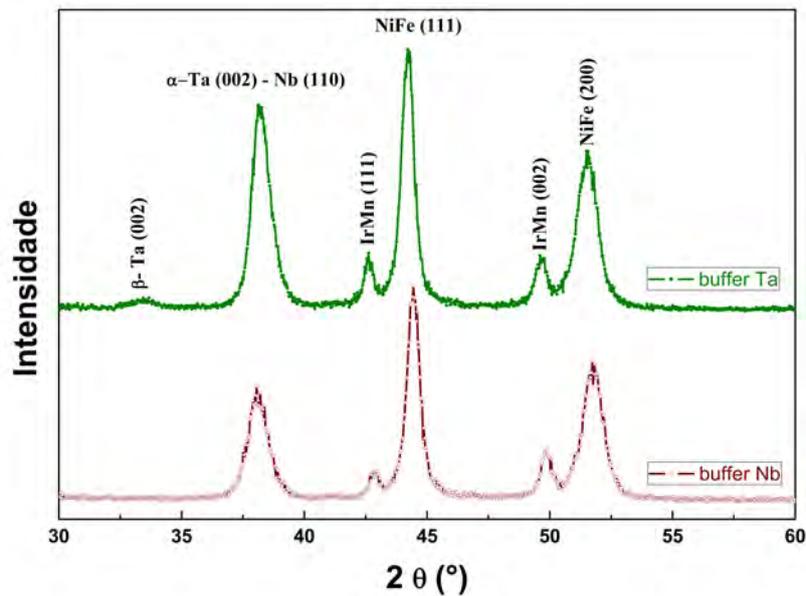


Figura 4.23: Padrões de difração de raios-X para as válvulas de *spin* com *buffer* de Ta e Nb, respectivamente.

Também encontramos evidências de um pico de difração na posição angular  $2\theta \approx 33,5$ , este pico corresponde ao  $\beta - Ta$  na fase tetragonal que é formada na amostra com *buffer* de Ta, já que ele não aparece na amostra de Nb. A formação da fase  $\beta - Ta$  também pode ser encontrada quando depositamos Ta sobre  $SiO_2$  ou sobre substratos de Si naturalmente oxidados [102]. Os picos que correspondem à camada de IrMn *fcc* nas orientações (111) e (200) são localizados nas

posições:  $2\theta = 42,62^\circ$  e  $49,61^\circ$  para a amostra com *buffer* de Ta e em  $2\theta = 42,95^\circ$  e  $49,85^\circ$  para a amostra correspondente ao *buffer* de Nb. Estes picos estão deslocados para ângulos maiores quando comparamos as amostras com o IrMn *bulk*:  $2\theta = 41,40^\circ$  e  $48,17^\circ$ , respectivamente. As intensidades dos picos do IrMn *fcc* sugerem uma orientação preferencial em (200). Usando a lei de Bragg, podemos inferir que as distâncias inter planares  $d_{111}$  e  $d_{200}$  estão contraídas ( $\Delta d/d \approx 3\%$ ) em relação a uma estrutura de NiFe *bulk*. Estes efeitos, tanto a intensidade como a contração das distâncias interplanares, são maiores na amostra com *buffer* de Nb, aparentemente as camadas de NiFe crescem sem nenhuma orientação preferencial e sem tensões em sua estrutura. Assim, do ponto de vista estrutural as amostras são muito similares, possivelmente a única diferença estrutural entre as duas amostras está no fato de que o *buffer* de Nb favorecer a orientação preferencial (200) na camada de IrMn.

As medidas de transporte foram feitas usando o método usual das quatro pontas sem aplicar um campo magnético (medidas em campo magnético zero). A figura 4.24 mostra a dependência da resistência com temperatura (R vs T) nas duas amostras; podemos observar que os resultados são bem diferentes. A curva para a amostra com *buffer* de Ta apresenta um comportamento típico para válvulas de spin com camada separadora de Nb para  $d_{Nb} = 500 \text{ \AA}$  [9], como foi observado nas amostras de outras famílias estudadas neste trabalho, esta amostra tem um valor de  $T_c = 5,9 \text{ K}$ . Para a amostra com *buffer* de Nb,  $T_c$  tem um valor reduzido de  $5,3 \text{ K}$ ; além disso, a transição está formada por duas regiões (degraus) com diferentes características e inclinações.

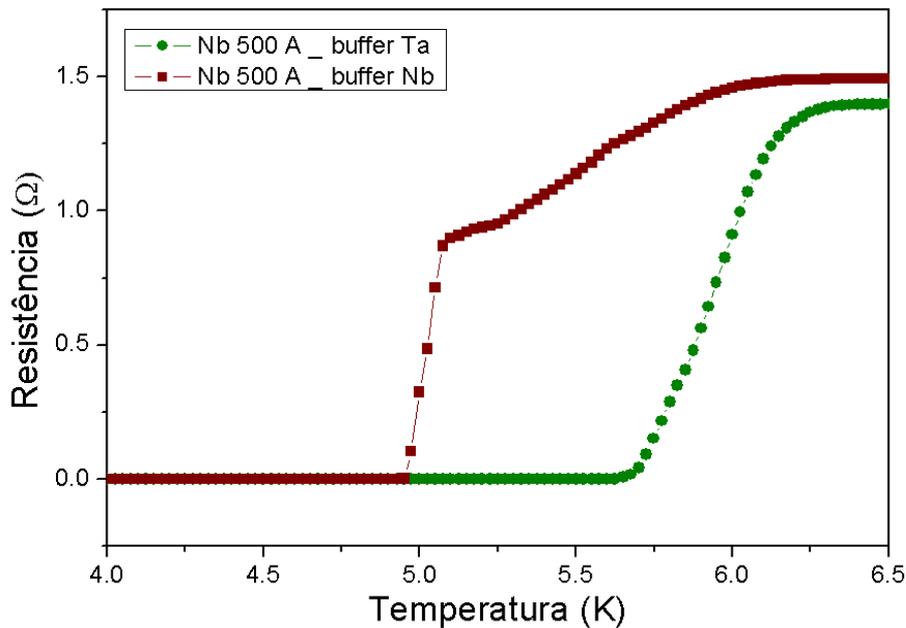


Figura 4.24: Curvas de resistência em função da temperatura de válvulas de *spin buffer*/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta, para amostras com *buffer* de Ta (círculos) e Nb (quadrados). A curva com *buffer* de Nb apresenta uma transição supercondutora em duas etapas.

É importante lembrar que as transições nestas curvas estão relacionadas com as camadas espaçadoras de Nb em cada amostra, isso é devido ao fato da  $T_c$  da camada fina do buffer de Nb (150 Å) estar próximo de 2,23 K [103] podendo ser reduzida pela camada AFM de IrMn, como foi observado nas bicamadas de IrMn/Nb estudadas por Wu e colaboradores [104].

Para estabelecer uma conexão entre os resultados das medidas de transporte e o comportamento magnético no estado supercondutor da camada separadora de Nb (500 Å) nas válvulas de *spin*, realizamos medidas de histerese magnética em diferentes temperaturas. As figuras 4.25(a) e 4.25(b) mostram as curvas de histerese das amostras com buffer de Ta e Nb, respectivamente. Durante as medidas, o campo magnético externo foi aplicado na mesma direção do campo aplicado no processo de crescimento das camadas. Para valores acima de 6 K as curvas de histerese de ambos os sistemas têm uma forma similar, que é típica da resposta magnética das válvulas de *spin* [58].

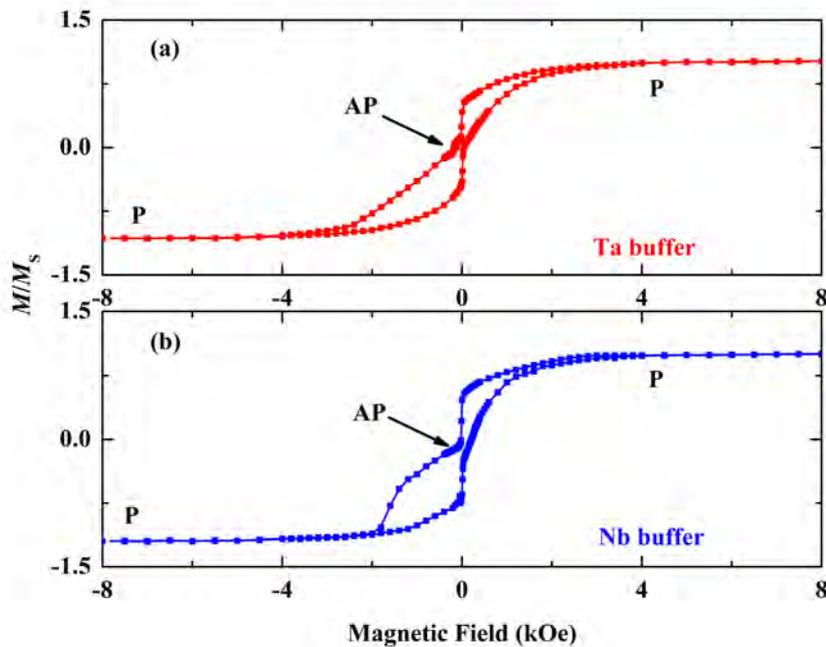


Figura 4.25: Curvas de histerese em  $T = 6K$  para as válvulas de *spin* *buffer*/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta para as amostras: (a) camada buffer de Ta e (b) para a camada buffer de Nb. Campo magnético aplicado paralelo à anisotropia unidirecional da interface IrMn/NiFe.

Para calcular um parâmetro magnético das curvas, os laços das camadas livres e presa foram separados graficamente (como nas análises anteriores das outras famílias). O valor de  $H_c$  da camada livre é de aproximadamente 200 Oe, enquanto que a camada presa tem valores de  $767,9 \pm 0,1$  Oe para a amostra de Ta e  $589,5 \pm 0,1$  Oe para a amostra de Nb. Como uma primeira aproximação [25, 26], o campo de *exchange bias* ( $H_{eb}$ ) pode ser deduzido a partir do deslocamento do centro da curva de

histerese ao longo do eixo de campo e na metade da altura de cada laço separado. O valor de  $H_{eb}$  estimado para cada amostra de *buffer* de Ta e Nb são:  $785, 1 \pm 0, 1$  Oe e  $588, 3 \pm 0, 1$  respectivamente. Como esperávamos, estes parâmetros são muito parecidos, partindo do fato de que as duas amostras têm quase as mesmas características estruturais, as pequenas diferenças entre elas podem estar relacionadas pelos diferentes graus da orientação preferencial (200). Estes resultados concordam com alguns trabalhos dedicados aos sistemas com efeito de *exchange bias*. Trabalhos como os de Öksüzoglu e colaboradores, descrevem a correlação entre a textura e as propriedades magnéticas tendo o Ta como *buffer* para estruturas de Ta/NiFe/IrMn/CoFe/Ta [105]. Por outro lado, Castro e colaboradores, estudaram tricamadas de NiFe/IrMn/Co crescidas sobre camadas *buffer* de Ta e Cu e encontraram que a textura cristalina tem uma grande influência sobre as propriedades magnéticas da tricamada [106].

Assim como foi discutido anteriormente, a diferença entre os valores de  $H_c$  e  $H_{eb}$ , obtidas em 6 K, nas válvulas de *spin* pode ser atribuída ao grau de orientação preferencial (200) da camada de IrMn na amostra com *buffer* de Nb. Mas isso não pode explicar os resultados magnéticos abaixo de  $T_c$  e também os resultados das medidas de transporte.

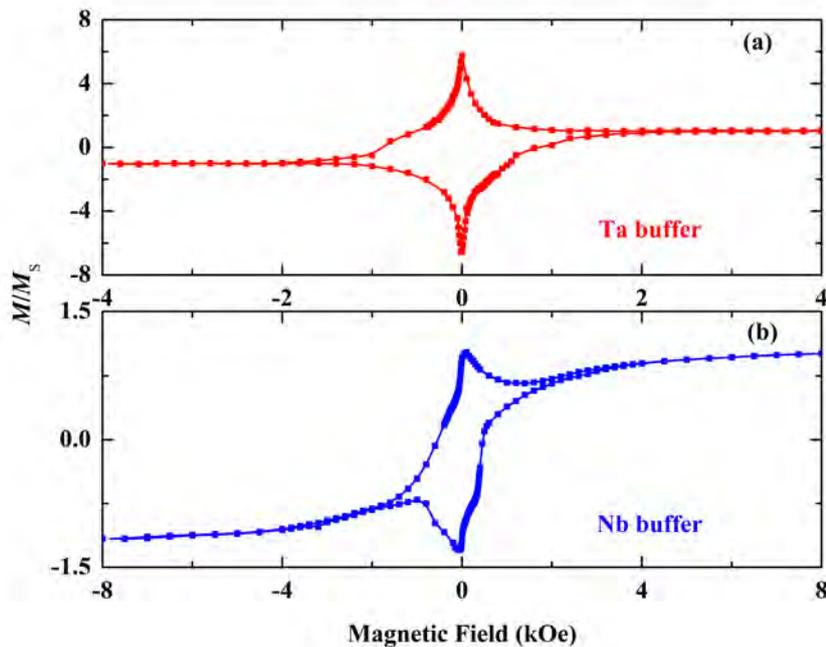


Figura 4.26: Curvas de histerese em  $T = 2K$  para as válvulas de *spin* *buffer*/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta para as amostras: (a) camada *buffer* de Ta e (b) para a camada *buffer* de Nb. Campo magnético aplicado paralelo à anisotropia unidirecional da interface IrMn/NiFe.

Para esclarecer este comportamento as curvas de histerese foram medidas a uma temperatura de

2 K para as amostras com *buffer* de Ta e Nb e são apresentadas nas figuras 4.26(a) e 4.26(b), respectivamente. A figura 4.26(a) mostra um comportamento característico de um sistema híbrido SC/FM, ou seja, nesta temperatura a resposta magnética é dominada pela contribuição supercondutora da camada separadora de Nb. A forma desta curva está relacionada com processos de vórtices supercondutores: penetração, pinagem e criação-destruição de vórtices [69]. Este fato impede a obtenção dos parâmetros ferromagnéticos com precisão ( $H_c$  e  $H_{eb}$ ), embora possamos observar que a curva apresenta uma espécie de “salto” próprio dos sistemas híbridos que usam NiFe como material FM. A figura 4.26(b) é também uma superposição das contribuições FM e SC próprias dos híbridos. Porém, o laço não se desloca substancialmente ao longo do eixo do campo magnético ( $H_{eb}$  está próximo a zero). Isso pode ser devido também à contribuição supercondutora que blinda o efeito de *exchange bias*. Além disso, o salto que pode apresentar em campo zero é menor do que o apresentado na amostra com *buffer* de Ta.

De acordo com Wu e colaboradores, as interações magneto estáticas entre o Nb e uma camada de IrMn podem causar flutuações do  $H_{eb}$  e  $H_c$  na bicamada IrMn/NiFe [104]; estes parâmetros podem variar de forma irregular abaixo da  $T_c$  do Nb, mas, permanecem constantes acima da  $T_c$ . Este comportamento é atribuído a uma instabilidade da dinâmica entre o spin e a estrutura cristalina da camada AFM provocada pelo Nb, o qual também afeta indiretamente a interação na interface IrMn/NiFe, em outras palavras, o efeito de *exchange bias*.

Além disso, espera-se que os domínios magnéticos da camada de NiFe sejam diretamente alinhados pela camada AFM em um acoplamento domínio a domínio: comportamento encontrado em sistemas de bicamadas como o LaFeO<sub>3</sub>/Co [107]. Consequentemente, a estrutura de domínio da camada de NiFe está influenciada também pela camada *buffer* de Nb. Este contexto também nos ajudará a explicar o comportamento de dois degraus que aparece nas medidas de transporte elétrico da amostra com *buffer* de Nb. Aliás, também temos que levar em conta o efeito de proximidade entre o Nb e o IrMn [104]. Em todo caso, poderíamos esperar que estes efeitos também influenciariam a estrutura de spin da camada de IrMn. Além disso, os momentos magnéticos da amostra com *buffer* de Ta aumentam quando a temperatura diminui de 6 K a 2 K. De acordo com relatos anteriores [60,108,109], estes resultados sugerem que o Nb fica ferromagneticamente acoplado às camadas de NiFe para um pequeno campo magnético aplicado. Isso está relacionado com a resposta do Nb ao campo de dispersão (*stray field*) das camadas de NiFe. É interessante notar que os momentos magnéticos na amostra com *buffer* de Nb não aumentam quando a temperatura diminui. Portanto, se poderia assumir que o Nb não está acoplado ferromagneticamente às camadas de NiFe para baixo campo magnético.

Como as medidas de transporte foram feitas em campo zero, podemos esperar a presença de uma grande estrutura de domínio nas camadas de NiFe, com as paredes de domínio predominantemente do tipo de Néel. As paredes de domínio são as fontes dos campos de dispersão [54]. Em tricamadas de Co/Nb/Co o campo de dispersão é o principal responsável pela supressão da supercondutividade [110]. É claro que estes campos, a partir da configuração de domínio estático, só não podem explicar a redução e as duas etapas da transição supercondutora, porque as duas válvulas de spin têm a mesma estrutura NiFe/Nb/NiFe. Steiner e Ziemann observaram uma alteração na temperatura de transição, quando a configuração dos momentos magnéticos de uma camada FM é rearranjada para

uma bicamada FM/SC [111]. Também foi encontrado que movimentos e rearranjos dos domínios magnéticos das camadas FM induzidos pelo efeito Meissner da camada SC podem causar anomalias na resistência em sistemas híbridos FM/SC [112]. Portanto, no nosso caso, o comportamento da curva perto da temperatura de transição para a válvula de spin com *buffer* de Nb, pode ser atribuído ao campo de dispersão desde as paredes de domínio no rearranjo dos domínios nas camadas NiFe, sendo provocado pela estrutura de dinâmica de spin na camada de IrMn, devido a interação com o *buffer* de Nb.

Uma interpretação alternativa de nossos resultados pode ser baseada no trabalho de Cheng e Stearns [113] que observaram que a transição supercondutora em sistemas de multicamadas de Nb/Cr ocorre em duas etapas para espessuras de Nb menores que 1000 Å. Além disso, a área abaixo das curvas da segunda etapa aumenta linearmente com o número de interfaces Nb/Cr, sugerindo que isso pode ser relacionado com este número, embora nestes sistemas existam somente interações entre as camadas SC e AFM, sem a presença de camadas FM. Logo, no nosso caso, é razoável concluir que a interação entre o *buffer* de Nb, a camada de IrMn e as estruturas *bulk* de domínio FM e AFM, realizam um papel importante tanto na origem das duas etapas na transição como na redução da  $T_c$ .

### 4.2.5 Resposta do Efeito Meissner Paramagnético nas Válvulas de *Spin* Supercondutoras

As válvulas de spin com espessuras acima de 300 Å de Nb apresentam um comportamento exótico de magnetização, como pode ser observado para amostras representativas na figura 4.27. Enquanto a amostra de 200 Å expõe uma curva de magnetização típica de uma válvula de spin, as amostras de 400 e 500 Å mostram histereses atípicas (para 4 e 2 K no primeiro caso e em todos os painéis, no segundo caso). Esse comportamento é qualitativamente igual para os dois tipos de amostras (tanto as *spin top* como *bottom*). Podemos ver na figura 4.27 que a amostra com 200 Å tem o comportamento de uma válvula de *spin* normal, apesar de em 2 K já estar no estado supercondutor. Isso não é surpreendente, pois muitas vezes em estruturas de dimensões nanométricas, as supercorrentes não são suficientemente fortes para exibir o efeito Meissner. As curvas encontradas em 2 K para a amostra de 400 Å e para a amostra de 500 Å (4 e 2 K) exibem uma resposta típica dos sistemas híbridos SC/FM. Essa estrutura é geralmente explicada a partir da presença de vórtices presos. Mas como é mostrado na fig. 4.27 (4 K para 400 Å e 5 K para 500 Å) em alguns casos existem cruzamentos dos laços da histerese, quando o efeito inverte os laços. Isso acontece porque o sistema mostra uma histerese contrária ao que ocorre usualmente.

A trajetória da curva de histerese é mostrada no gráfico da figura 4.28(b): quando o campo magnético diminui para zero, desde um valor positivo, a magnetização muda drasticamente para valores negativos, depois de mudar a orientação do campo e aumentar novamente, a magnetização aumenta um pouco para finalmente alcançar um valor negativo de saturação. Na volta para o campo zero, a magnetização se comporta de forma contrária de novo, mas desta vez mostrando valores positivos de magnetização (as setas da figura indicam como é o percurso da magnetização). Outra forma de identificar este comportamento é através dos pontos de cruzamento dos laços da curva, os quais se deslocam quando a temperatura diminui.

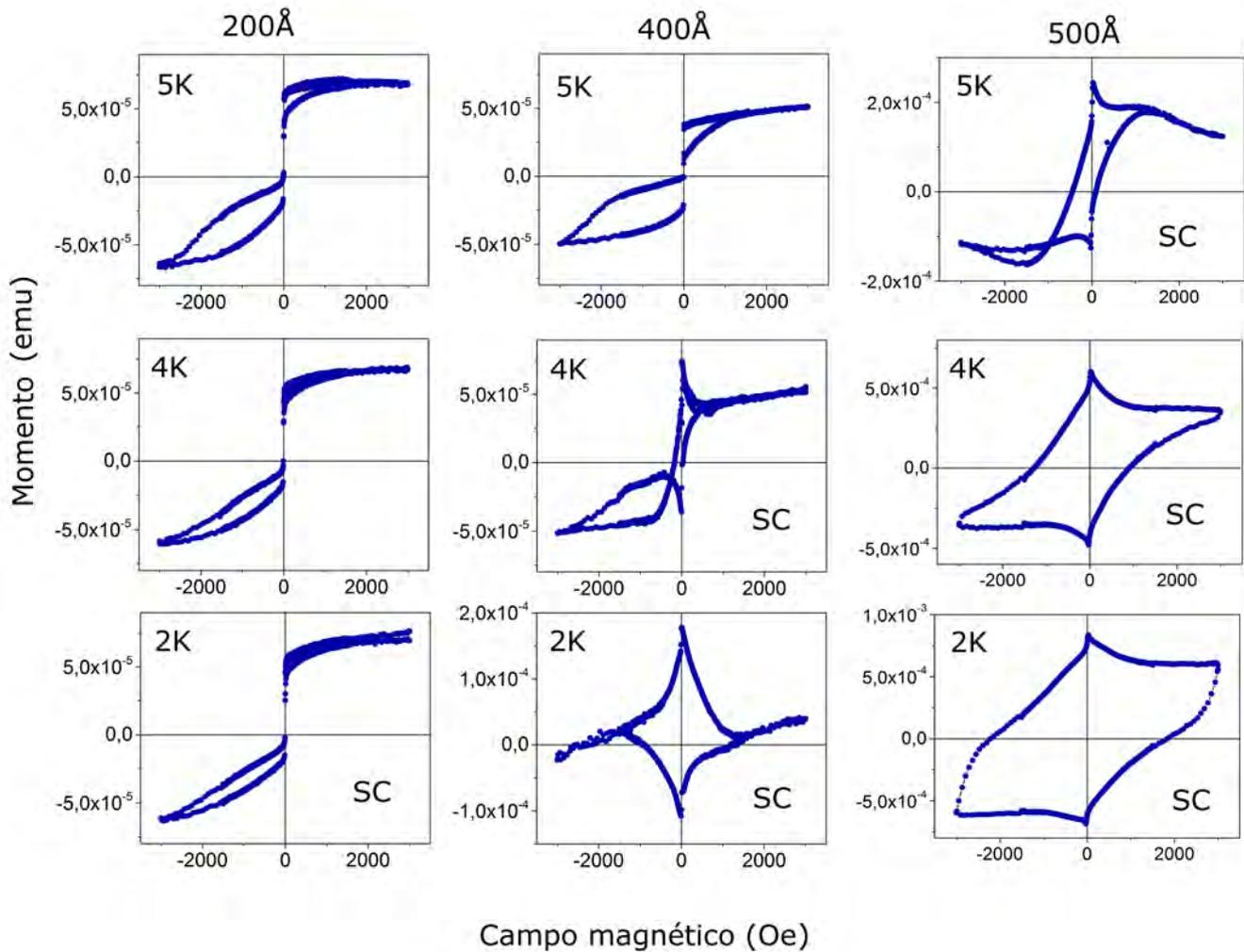


Figura 4.27: Curvas de magnetização para três amostras representativas de espessuras diferentes entre 5 e 2 K. O *SC* nos painéis significa que essas amostras estão na fase supercondutora com resistência nula (tirado das medidas de resistência apresentadas acima).

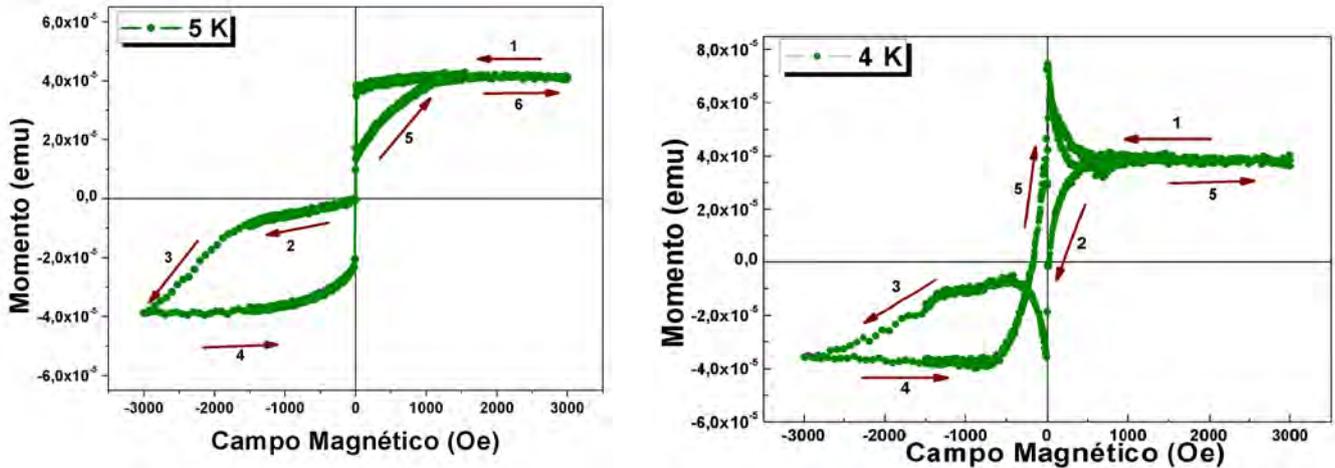


Figura 4.28: Curvas de histerese da válvula de *spin top* Ta/NiFe/Nb (400 Å)/NiFe/IrMn/Ta para as temperaturas: (a) 5 K que apresenta uma histerese típica, e (b) 4 K com um comportamento anômalo. Estas temperaturas estão próximas a  $T_c$  da amostra. As setas em cada curva indicam a orientação do trajeto da curva e os números indicam a ordem em que foi medida a amostra.

A principal causa deste comportamento está associada à contribuição supercondutora das camadas SC, a qual blindava a resposta ferromagnética típica das válvulas de spin (4.28(a)). Este efeito somente acontece nas amostras compostas por um sistema híbrido SC/FM, a natureza das camadas FM pode ter uma grande importância, já que este efeito não está presente na família Co/Nb/Co, portanto poderia ocorrer no caso de materiais magneticamente moles.

Para entender o comportamento magnético desse sistema, mostramos a histerese completa (começando com campo zero) de uma das curvas na figura 4.29; as curvas de histerese na inserção mostram um sistema em duas temperaturas: acima de  $T_c$  (5 K), que apresenta uma resposta parecida com uma curva clássica, e abaixo de  $T_c$  (3 K), parecida com uma curva típica de um sistema híbrido SC/FM. A aplicação de um campo quando a amostra não está magnetizada, tem como consequência uma resposta paramagnética forte. Na figura 4.29, a parte saturada da curva de 5 K, na inserção, corresponde à magnetização de duas camadas de NiFe orientadas de modo paralelo; assim podemos ver que a contribuição supercondutora é superior ao efeito do NiFe. Os pulos de magnetização em campo zero são da mesma ordem de um sistema com uma orientação magnética das camadas únicas na mesma direção, formando um momento magnético gigante também conhecido como *Macro-spin*; portanto, sabemos que o supercondutor tem pouco efeito na magnetização das camadas de NiFe.

Os resultados apresentados podem ser interpretados assumindo que as supercorrentes no Nb circulam na direção contrária e assim fortalecem o campo magnético. Esse efeito Meissner paramagnético, às vezes chamado efeito Wohleben, é bem conhecido [49, 114] e geralmente é atribuído a um estado metaestável que pode ser facilmente destruído [50]. O fato de poder reproduzir uma curva de histerese completa junto com uma resposta paramagnética, começando com magnetização nula, mostra que o estado paramagnético nos nossos sistemas é bastante estável.

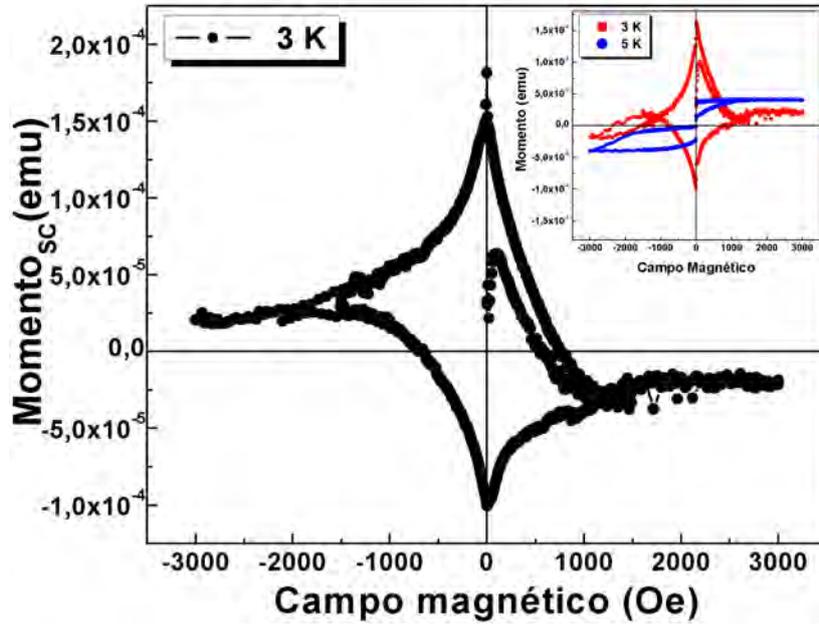


Figura 4.29: Resposta magnética supercondutora de uma válvula de *spin* Si/Ta/NiFe/Nb(400 Å)/NiFe/IrMn/Ta a 3 K. A inserção mostra duas curvas de histerese usadas para subtrair a resposta ferromagnética das amostras a 3 K.

Mas ao mesmo tempo, o sistema mostra uma histerese caracterizada por vórtices presos que mostram um comportamento diamagnético. Isso também é contrário a experiência comum.

Podemos calcular a separação entre os vórtices  $d_{vortex}$  a partir da equação 1.22. Neste caso podemos expressar em valores conhecidos de momento  $m$  e volume da amostra ( $V = A_T \cdot w$ ), onde  $w$  é o comprimento da amostra ( $w \sim 4,5$  mm).  $A_T$  é a área transversal da amostra, a qual é calculada a partir dos valores de largura da amostra ( $l \sim 2$  mm) e da espessura da camada SC  $d_{SC}$ . Partindo de  $B = \mu_0 M + \mu_0 H$  podemos assumir que o campo  $B$  pode ser expresso como  $B_{in} = \mu_0 M$ . Como  $M$  é a magnetização da amostra, podemos escreve-la como  $M = m/A_T \cdot w$ , onde  $m$  é o momento magnético obtido das medidas de histerese nas amostras, portanto teríamos  $d_{vortex}$  assim:

$$d_{vortex} = \sqrt{\frac{\phi_0 \cdot A_T \cdot w}{\mu_0 \cdot m}}. \quad (4.1)$$

Considerando que as amostras são sistemas híbridos, as medidas têm tanto uma contribuição SC como uma contribuição FM. Portanto, precisamos subtrair a contribuição FM para obter um valor de  $m$  propriamente supercondutor; então, temos que  $m = m_{max} - m_{sat}$ , onde  $m_{max}$  é o valor do momento magnético para  $H = 0$  no estado supercondutor ( $T < T_c$ ) e  $m_{sat}$  corresponde ao valor do momento de saturação magnética no estado normal ( $T > T_c$ )<sup>4</sup>. Em tal caso temos a seguinte

<sup>4</sup>Como as amostras estudadas neste trabalho são válvulas de *spin*, devemos ter em conta que a  $m_{sat}$  corresponde

equação:

$$d_{vortex} = \sqrt{\frac{\phi_0 \cdot A_T \cdot w}{\mu_0(m_{\max} - m_{sat})}}. \quad (4.2)$$

Assim podemos fazer um gráfico da variação do comprimento de separação dos vórtices em função da temperatura que é apresentado na figura 4.30. Observamos que a separação dos vórtices é menor para amostras com camadas mais espessas de Nb, além de aumentar com a temperatura. Estes vórtices têm uma separação significativa maior do que a espessura da camada supercondutora e conseqüentemente o número de vórtices é menor para este tipo de amostras. Além disso, a separação entre os vórtices diminui com o aumento da espessura da camada SC o que pode indicar um aumento da concentração de vórtices. Por outro lado, observamos também que esta separação diminui com a temperatura, o que pode indicar um aumento do número de vórtices ao aumentar a supercondutividade. O

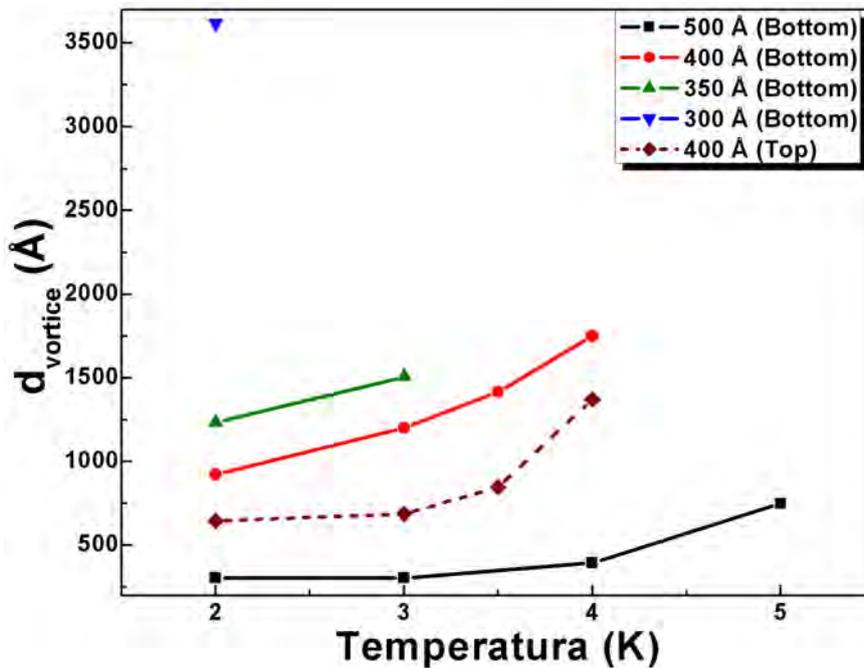


Figura 4.30: Separação dos vórtices em função da temperatura para as válvulas de *spin bottom* (linha sólida) e *top* (linha tracejada).

estado supercondutor do Nb é muito sensível às condições de superfície e geometria, o que explica a presença do PME neste sistema levando a conseqüente captura do fluxo e compressão do mesmo com a diminuição da temperatura [44, 50].

as camadas FM configuradas paralelamente, portanto estes valores são tomados num intervalo de campos magnéticos grandes.

O tamanho dos vórtices é especialmente importante, pois sendo consideravelmente maior que a espessura da camada de Nb podem penetrar nas camadas de NiFe. Devido a efeitos de proximidade entre as camadas Nb e NiFe, os pares de Cooper penetram nas camadas FM certo valor de “profundidade” que pode ser expresso como o comprimento de coerência FM ( $\xi_{FM}$ ). Este comprimento pode ser calculado usando a expressão  $\xi_{FM} = \hbar v_F / 2E_{ex}$ , onde  $E_{ex}$  é a energia de troca [69]. Para o caso do NiFe usamos os valores  $E_{ex} = 135 \times 10^{-3}$  eV e  $v_F = 2,2 \pm 0,2 \times 10^5 \text{ms}^{-1}$  [115], com o qual temos  $\xi_{NiFe} \sim 5,4 \text{ \AA}$ , o que é menor do que o valor da espessura das camadas de NiFe.

O resultado encontrado para espessuras maiores da camada SC mostra que estas válvulas de spin apresentam um comportamento parecido aos sistemas híbridos SC/FM. Analisamos a contribuição supercondutora subtraindo cada curva de histerese obtida abaixo da  $T_c$  mostrando assim as contribuições SC de duas amostras com  $d_{SC} = 400 \text{ \AA}$ . Podemos observar que a intensidade magnética aumenta à medida que a temperatura diminui e o comportamento anômalo permanece devido à presença dos pontos de cruzamento dos laços em cada curva que se deslocam com a temperatura. As válvulas de spin top (figura 4.31(a)) apresentam uma forma não simétrica das curvas de magnetização. Isso pode ser atribuído ao efeito de acoplamento da camada AFM com a camada FM1, além disso, também deve ser considerada a qualidade de deposição das camadas devido ao seu arranjo. Para as válvulas de spin bottom (4.31(b)), temos a resposta mais simétrica nas curvas de magnetização, mas neste caso observamos que os laços de cada curva de histerese mostram que se juntam em partes encurvadas antes de alcançar o valor de campo para o qual a resposta SC acaba ( $H_c$ ), e que permitiria analisar efeitos como a geração de vórtices supercondutores e suas possíveis transições de fase [70].

Por outro lado, as respostas magnéticas aumentam para baixas temperaturas e definimos o valor da magnetização em campo magnético zero ( $H = 0$ ) para comparação. Estes valores estão analisados na figura 4.32; observamos que a magnetização nas válvulas de *spin top* é maior do que nas válvulas de *spin bottom*, porém apresentam o mesmo comportamento com a temperatura. Esta diferença de valores é observada também na análise da magnetização das amostras com espessura menores da figura 4.33, o que nos indica que esta diferença de intensidades está relacionada com o arranjo das camadas, ou posição da camada AFM, na válvula de *spin*.

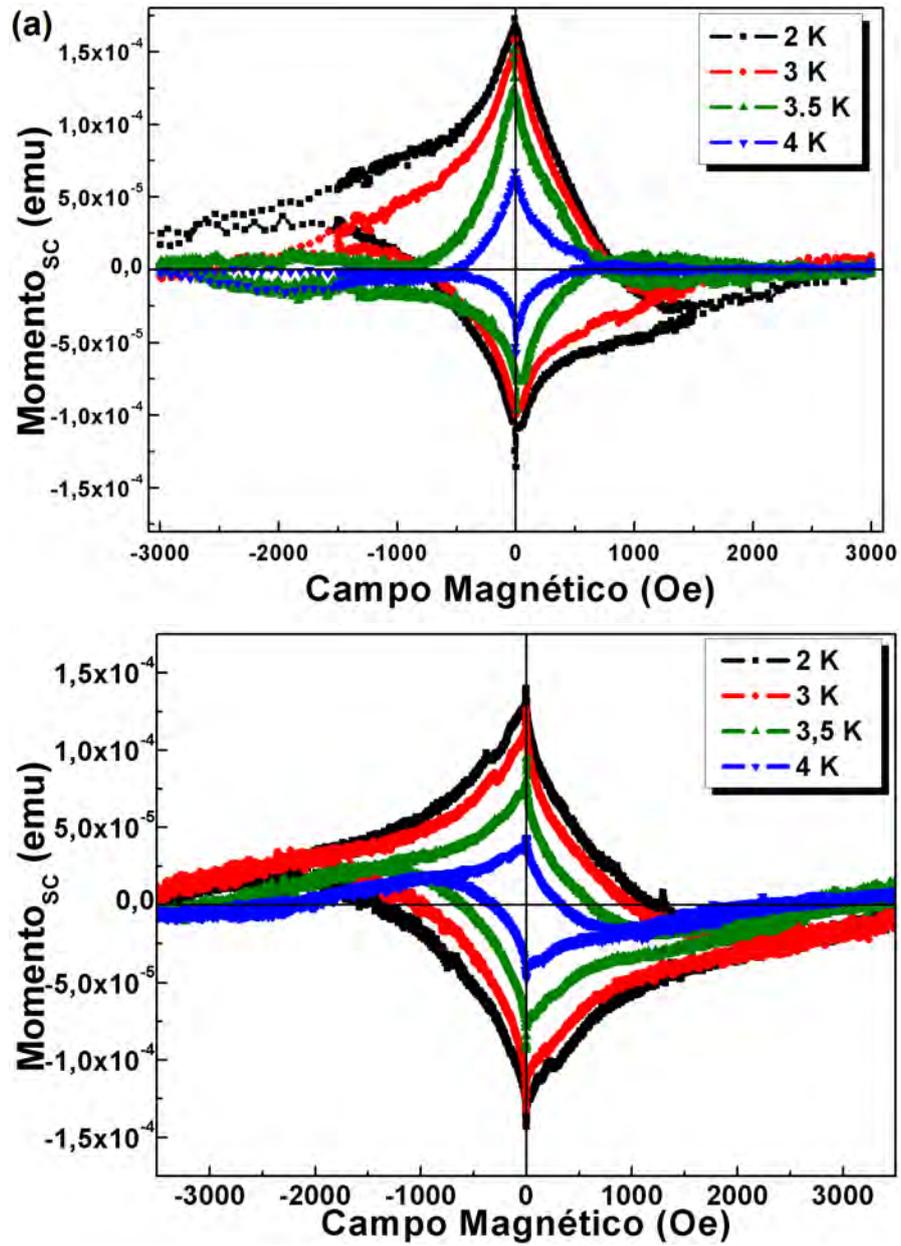


Figura 4.31: Magnetização devida à contribuição supercondutora das válvulas de *spin* com  $d_{SC} = 400 \text{ \AA}$ . Para as válvulas tipo (a) *top* e (b) *bottom*.

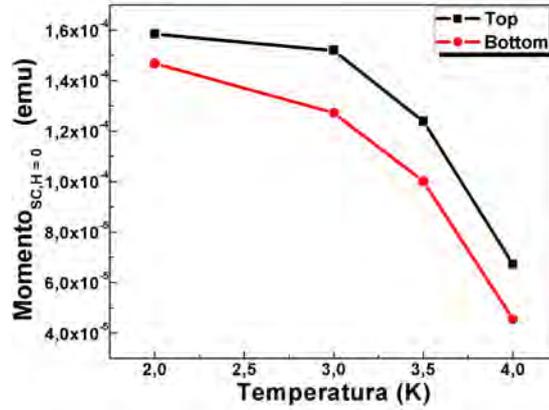


Figura 4.32: Magnetização devida às contribuições SC em campo  $H = 0$  para as amostras *top* e *bottom* com  $d_{SC} = 400$  Å.

#### 4.2.6 Resultados Complementares

Podemos extrair das nossas medidas os valores de magnetização de saturação,  $M_{sat}$  (figura 4.33), campo de *exchange bias*,  $H_{eb}$  (figura 4.35), e campo coercitivo,  $H_C$  (figura 4.36), em função da temperatura.

Os resultados da magnetização de saturação em função da temperatura ( $M_{sat}(T)$ ) estão apresentados na figura 4.33 para o intervalo de temperaturas 2 a 30 K. Ao comparar os resultados para os dois tipos de válvulas de *spin*, observamos que o comportamento da magnetização para cada tipo de amostra é diferente e, apesar de apresentar uma tendência, mostra alguns picos para certos valores de temperatura. No caso das válvulas de *spin top* figura 4.33(a), encontramos que os valores de magnetização aumentam com a espessura da camada SC, o que não é esperado uma vez que as espessuras das camadas FM são constantes. O que muda com a espessura das camadas de Nb é a rugosidade que, de acordo com os valores das camadas FM da tabela 4.5, tendem a diminuir com a espessura das camadas SC. Porém, observamos que algumas amostras têm valores abaixo da tendência esperada para certas temperaturas como é o caso para amostras com 200 e 400 Å, o que pode estar relacionado com o nível de rugosidade encontrado nas interfaces das camadas FM. Para as amostras das válvulas de *spin bottom* [figura 4.33(b)] a variação da  $M_{sat}(T)$  apresenta uma diminuição mais acentuada para baixas temperaturas para amostras com espessuras 100, 150 e 200 Å, observando-se alguns valores máximos em 20 e 5 K. Não obstante, temos também amostras que apresentam valores de magnetização abaixo do esperado, como é o caso da amostra com  $d_{SC} = 250$  Å.

Se compararmos os resultados de magnetização entre as válvulas de *spin top* e *bottom*, os valores das válvulas *top* são maiores que as *bottom*, mas apresentam um erro maior, além de um comportamento diferente para cada amostra, o que não acontece nas válvulas *bottom*. Este tipo de diferença pode estar relacionado diretamente com a posição da camada AFM e a qualidade da deposição das camadas FM/SC/FM. Em último caso, observamos que as amostras com espessura da camada de

Nb maior  $d_{SC}$  (350 e 400 Å para as válvulas *top* e 300 , 350 e 400 Å para as válvulas *bottom*) têm um comportamento diferente nas temperaturas mais baixas. A medida que aumenta o  $d_{SC}$  temos um tipo de pico que se desloca para 5 K no caso das amostras com 400 Å,, o qual pode estar associado a mudança das curvas de histerese ao chegar às temperaturas de transição supercondutoras.

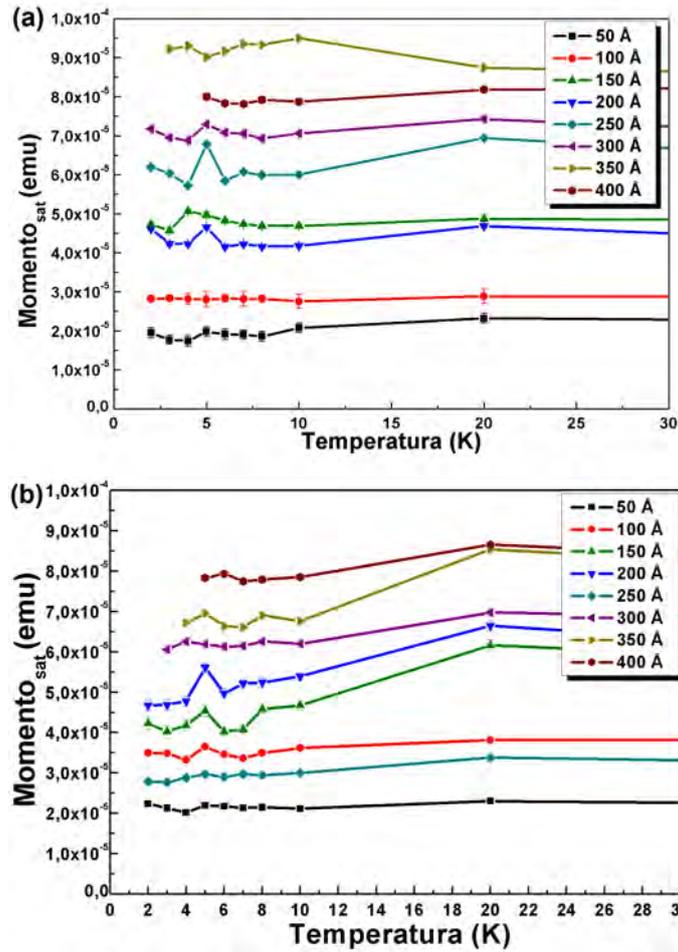


Figura 4.33: Magnetização de saturação em função da temperatura  $M_{sat}(T)$ , para comparar o comportamento das amostras da válvula de *spin*: (a) *top*, e (b) *bottom*.

Uma análise mais cuidadosa do comportamento da magnetização com a espessura da camada SC pode ser vista na figura 4.34 para duas temperaturas diferentes (10 e 5 K) e para os dois tipos de válvulas estudadas (top e bottom). O gráfico da figura 4.34 (a) apresenta o comportamento das válvulas *top*, nas quais a magnetização aumenta com a espessura, mas em uma proporção baixa se mudamos a temperatura de medida (6 %). Em algumas amostras observamos valores de magnetização maiores para as mesmas espessuras da camada SC ( $d_{SC} = 150$  e  $350$  Å); isso poder ser atribuído também à qualidade das camadas depositadas em cada amostra (tabela 4.5), como já mencionamos anteriormente. Para as válvulas *bottom* [gráfico 4.34 (b)], observamos um comportamento crescente diferente do observado nas válvulas *top*, com uma diferença entre temperaturas menor em 2 % (com exceção da amostra de  $200$  Å que apresenta uma diferença aproximada de 10 %). Também observamos que a magnetização da amostra com  $250$  Å de espessura apresenta um valor menor do que as amostras anteriores ( $150$  e  $200$  Å), o qual extrapola a tendência do resto das amostras do mesmo tipo com respeito à magnetização em função da espessura da camada SC.

Na análise do campo de *exchange bias* em função da temperatura ( $H_{eb}(T)$ ), a figura 4.35 apresenta o resultado dos valores calculados usando a equação 1.10 para as amostras com diferente valor de  $d_{SC}$  no intervalo de temperaturas de 300 a 2 K. Para um estudo mais detalhado destes valores em baixas temperaturas, cada gráfico da figura 4.35 tem uma inserção destes valores em um intervalo de temperatura menor (com uma escala de 1 a 20 K). Observamos uma tendência decrescente com o aumento da temperatura, onde são encontrados certos desvios irregulares para algumas temperaturas. No entanto, como é mostrado na inserção de cada gráfico, as amostras apresentam um desvio positivo não muito bem definido em 5 K. Isto pode indicar que nesta temperatura existe uma transição magnética ou ser simplesmente um resultado anômalo causado pela sequencia de medida com o equipamento.

Por outro lado, observamos que o comportamento da intensidade do campo  $H_{eb}$  para cada amostra não está relacionado com o aumento da espessura da camada SC, já que o valor do campo é menor para certas amostras com espessuras maiores que a amostra de  $50$  Å.

Também podemos observar que, as amostras com espessuras maiores não apresentam um valor de campo  $H_{eb}$  ou  $H_C$  nas temperaturas mais baixas, sendo que para as válvulas *top* (com espessuras de  $350$  e  $400$  Å ) têm uma temperatura mínima em 3 e 4 K, respectivamente. Isso corresponde à mudança de comportamento magnético observado próximo às temperaturas de transição supercondutora, verificando-se uma resposta parecida aos sistemas híbridos FM/SC/FM na temperatura de transição ou  $T_c$ .

O campo coercitivo  $H_C$  foi calculado usando a equação 1.9 para cada uma das amostras estudadas nas diferentes temperaturas e os resultados estão na figura 4.36; cada inserção apresenta a respectiva amostra em um intervalo de temperatura menor (2 a 20 K). Como no caso do  $H_{eb}$ , o comportamento das intensidades de campo com respeito ao aumento da espessura não tem uma dependência linear, e que a espessura da camada SC não está relacionada com o aumento destes valores de campo. Por outro lado, podemos observar de novo um comportamento decrescente, encontrando-se picos próximos a 5K, como no caso do campo  $H_{eb}$ .

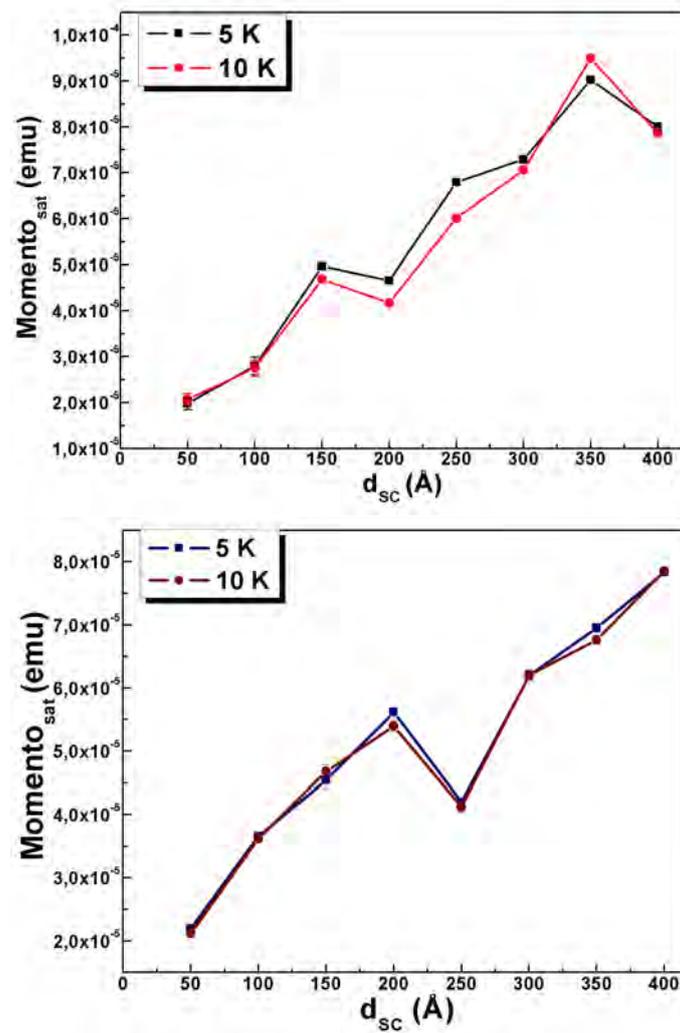


Figura 4.34: Magnetização em função da espessura  $d_{SC}$  em duas temperaturas diferentes (5 e 10 K) para os dois tipos de válvulas: (a) *top* com desvios positivos nas amostras de 150 e 350 Å, e (b) *bottom* com um desvio negativo em 250 Å.

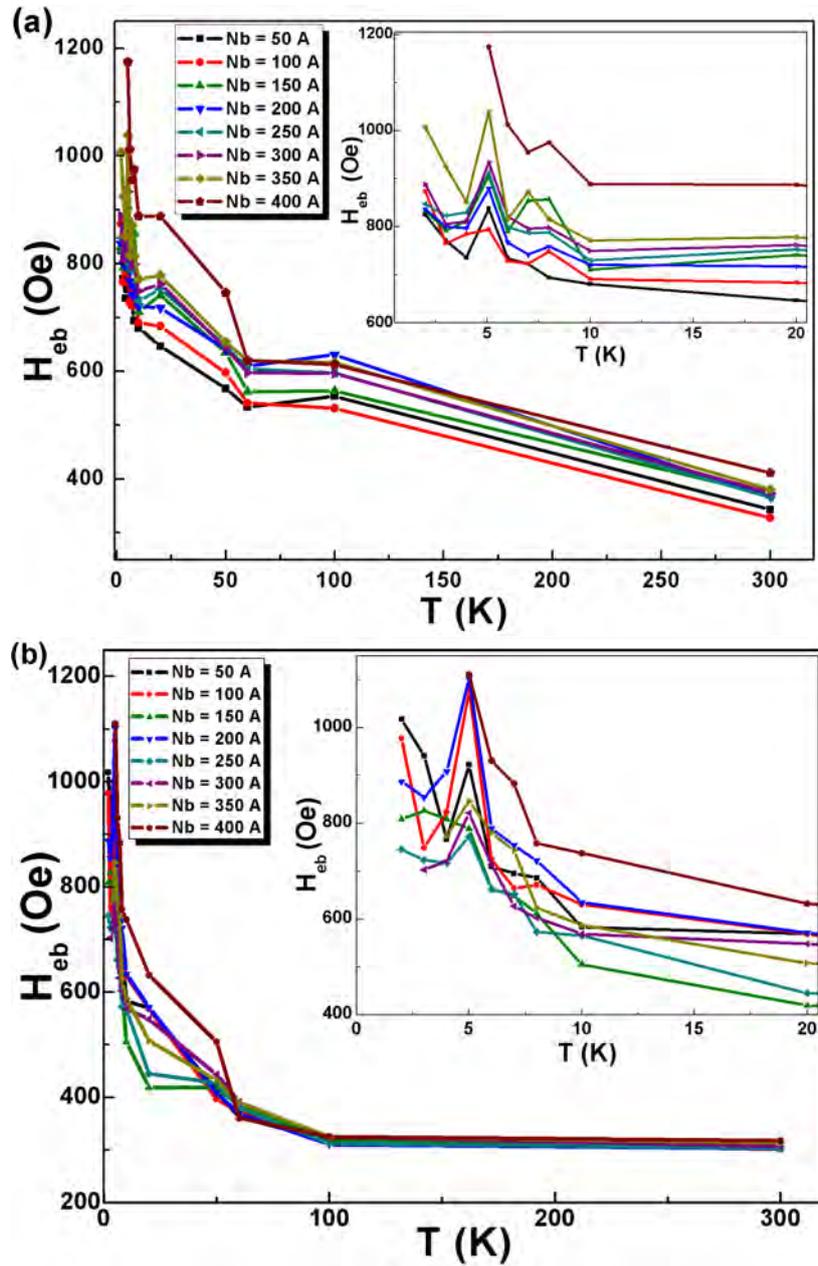


Figura 4.35: Campo de *exchange bias* em função da temperatura  $H_{eb}(T)$  para as válvulas de spin: (a) *top*, e (b) *bottom*. Onde a inserção em cada gráfico, mostra estes resultados para um intervalo de temperaturas menor (de 1 a 20 K).

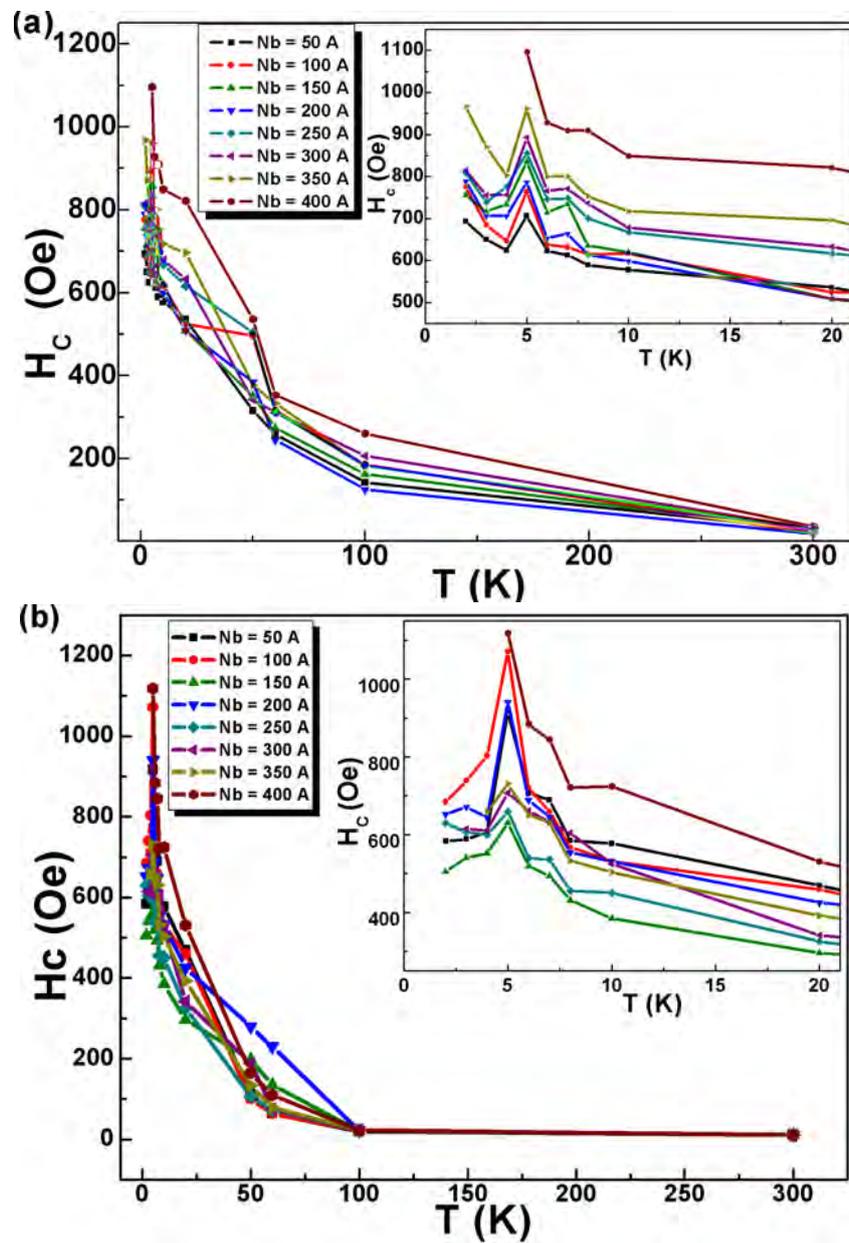


Figura 4.36: Campo coercitivo em função da temperatura  $H_c(T)$  para as válvulas de spin: (a) *top*, e (b) *bottom*. A inserção em cada gráfico mostra estes resultados para um intervalo de temperaturas menor (de 1 a 20 K).

# Conclusões

Neste trabalho foram estudadas as propriedades estruturais, de transporte elétrico e magnéticas das válvulas de *spin* com camada separadora SC. Cada amostra foi preparada por *magnetron sputtering*, à temperatura ambiente, seguindo a estrutura de multicamadas *Buffer/FM/SC/FM/AFM/Capping* (válvulas top) e *Buffer/AFM/FM/SC/FM/Capping* (válvulas bottom). Foram usados Co e NiFe como camada FM, IrMn como AFM, Nb para a camada SC, que muda de espessura para cada amostra, e Ta para as camadas *Buffer* e *Capping*. As amostras foram produzidas classificadas em duas famílias *Co/Nb/Co* e *NiFe/Nb/NiFe*.

Nas medidas de raios-X (estruturais), observamos que com o aumento da espessura na camada de Nb, as amostras tem uma aproximação aos padrões estruturais do Nb *bulk* (110) na fase estrutural *bcc*.

Para a família *Co/Nb/Co*, as amostras tendem a ter certa orientação preferencial, na qual os picos correspondentes ao IrMn e ao Co aparentemente diminuem em sua intensidade enquanto que o pico correspondente ao Nb aumenta com o aumento da espessura, o que indica que as amostras provavelmente diferem-se na rugosidade e a quantidade de imperfeições e impurezas. Além disso, com aumento da camada Nb surge a presença de outra fase estrutural do Ta, o  $\beta$ -Ta que tem uma orientação preferencial (002).

As medidas de transporte elétrico somente foram usadas para definir quais amostras apresentam transição supercondutora. Destes resultados podemos concluir que existe uma espessura mínima, abaixo da qual a amostra não apresenta transição supercondutora (também conhecida como espessura crítica  $d_{SC}^{cr}$ ). Este valor se encontra entre 150 e 200 Å, o que está de acordo com o apresentado na literatura [9, 10].

Para o comportamento magnético, ao comparar válvulas tipo *Top* e *Bottom*, o resultado encontrado é o típico de uma válvula de *spin*. Neste caso, as diferenças de intensidade na magnetização de saturação ou nos valores de campo coercitivo e de *exchange bias*, estão relacionadas com a qualidade das amostras e seu nível de rugosidade nas interfaces das camadas FM. Por outra parte, ao comparar amostras do mesmo tipo mas com diferentes espessuras da camada SC, é possível encontrar um aparente aumento da magnetização de saturação com o incremento da espessura, mas não é determinante já que este comportamento é aleatório e também pode estar relacionado com a qualidade das camadas em cada amostra. Quando analisamos os valores de campo coercitivo e de *exchange Bias*, encontramos um comportamento aleatório com respeito aos respectivos valores, porém todas as amostras apresentam uma desviação positiva (pico) nos valores de campo a 5 K de temperatura, o

que poder ser interpretado como uma possível transição magnética própria deste tipo de sistemas. As amostras com camadas separadoras grandes, em temperaturas abaixo de sua  $T_c$  não apresentam uma mudança significativa no seu comportamento magnético, somente mostram uma pequena transição a mais em valores de temperatura muito baixos; portanto, pode-se deduzir que a contribuição supercondutora está blindada pela ação das camadas FM, o qual é devido a natureza magnética das camadas de Co.

As amostras da família  $NiFe/Nb/NiFe$ , apresentam quase as mesmas características da anterior família, especialmente na parte do transporte elétrico, mas com marcadas diferenças nos outros tipos de propriedades. Uma dessas diferenças é observada no análise estrutural, onde a tendência encontrada na família  $Co/Nb/Co$  com respeito à camada de Nb mantém-se, mas neste caso a fase estrutural do  $\beta - Ta$  está presente em todas as amostras medidas. Com respeito as camadas de NiFe e IrMn, a orientação destas camadas depende do tipo de válvula medida. Enquanto que para as válvulas *top* tem uma mudança gradual de uma fase estrutural a outra [figura 4.15(a)], as válvulas *bottom* mantem a mesma distribuição nas fases e estas decrescem com o aumento da camada SC, figura 4.15(b).

Os resultados com maiores diferenças são relacionados com as medidas de histerese magnética. O comportamento para amostras com espessuras menores a mais ou menos 300 Å ainda é típico das válvulas de *spin*; assim estas apresentam transição supercondutora. No entanto, as amostras com  $d_{SC} > 300$  Å apresentam um resultado diferente ao esperado, similar aos sistemas híbridos SC/FM, mas com um detalhe na trajetória da curva de histerese, que consiste em uma inversão do valor da magnetização em campos próximos a zero; em outras palavras, observa-se uma trajetória no sentido oposto ao esperado de uma curva de histerese normal, identificado pelos pontos onde os laços das curvas de histerese se cruzam. Este comportamento ocorre em todas as amostras que tem resposta magnética semelhante aos sistemas híbridos (amostras com  $d_{SC} > 300$  Å).

A explicação deste fenômeno surpreendente poderia estar relacionada com a natureza magnética das camadas FM, já que apenas pode ser observada nas amostras com camadas de NiFe (material magneticamente mole). Porém esta não é uma explicação suficiente para este efeito.

Também podemos considerar a presença do efeito Meissner paramagnético (PME do inglês) na camada de Nb, sendo isso devido à captura de fluxo no interior do material e sua consequente compressão com a diminuição da temperatura. O resultado de nossas medidas magnéticas (curvas de histerese) poderia assim indicar a existência de um estado fundamental supercondutor paramagnético. Este tipo de efeito é observado em supercondutores convencionais, levando em conta a ideia da captura do fluxo no interior do material e sua consequente compressão com a diminuição da temperatura. A captura do fluxo pode ser uma propriedade intrínseca de qualquer SC devido à presença das bordas da camada na amostra (condições de superfície e geometria confinada) [44, 50].

Além disso, outra contribuição a este fenômeno está relacionada com a presença de vórtices nas camadas SC, os quais são resultado do PME presente nas camadas de Nb. Ao analisar as características dos vórtices como a separação entre eles, encontramos que estes valores diminuem com o aumento da espessura, mostrando assim que as amostras com espessuras menores ( $d_{SC} = 300$  Å) tendem a ter vórtices isolados. Por outro lado, nas amostras com espessura maior se pode observar que este comprimento diminui também a medida que a temperatura decresce, o qual é determinado

pela compressão do fluxo por parte da supercondutividade.

Além disso, o efeito que pode ter a camada AFM (ou a *buffer*) sobre a resposta magnética nas amostras é mínimo, mostrando que a camada AFM somente contribui com o deslocamento da parte do laço da curva de histerese, gerando assim uma assimetria evidente devido ao efeito de *exchange bias*.

Os nosso interesse futuro está relacionado à procura de outros sistemas similares (também na base do NiFe) que poderiam mostrar esse fenômeno. Também deve ser determinada para qual espessura do supercondutor esse efeito persiste.

Outro tema importante deste trabalho foi o estudo do comportamento da temperatura de transição supercondutora do Nb(500 Å) em duas válvulas diferentes do sistema *buffer/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta*, onde usamos Ta ou Nb nas camadas *buffer*, mostrando que o *buffer* de Nb pode influenciar significativamente tanto a supercondutividade como as propriedades magnéticas neste tipo de estruturas. Nas medidas de transporte, observamos duas alterações de inclinação nas curvas de  $R(T)$ , indicando duas etapas na transição supercondutora, junto com um valor de  $T_c$  menor do que na válvula de *spin* com *buffer* de Ta. Isso pode ser atribuído à estrutura de dinâmica de spin na camada AFM que rearranja os domínios da camada FM1 que está em contato com a camada SC. Além disso, as pequenas diferenças entre os valores de  $H_C$  e  $H_{eb}$  nas válvulas de *spin* são devidas ao fato de que o *buffer* de Nb induz uma maior orientação preferencial na camada de IrMn (200) [116]. Portanto, a pesquisa desenvolvida neste trabalho mostra outra vez que o campo das válvulas de *spin* e especificamente das válvulas de *spin* supercondutoras, ainda serve como uma fonte para novos e interessantes fenômenos.

# Outros Trabalhos

*“Propriedades Magnéticas de Sistemas Híbridos de Multicamadas Supercondutor/Ferromagneto (SC/FM)”*

Ury Denver Chacón Hernández

Dissertação de Mestrado

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - CBPF/MCT

Rio de Janeiro, RJ - Brasil

2011

Os sistemas híbridos de materiais supercondutores e ferromagnéticos (SC / FM), apresentam propriedades pouco usuais, como a coexistência entre dois fenômenos excludentes, como são a supercondutividade e o magnetismo, no mesmo sistema. Neste trabalho são apresentadas medidas de magnetização de sistemas híbridos SC/FM em multicamadas, os quais são obtidos por deposição catódica no sistema *Magnetron Sputtering*, utilizando nióbio (Nb) como camadas supercondutoras de espessura fixa (500 Å) e materiais como o cobalto (Co) ou permalloy (NiFe) para as camadas ferromagnéticas, onde as espessuras das camadas ferromagnéticas diferem em cada sistema preparado (50, 100 e 200 Å). As propriedades do material supercondutor são alteradas na interface SC/metal por causa do efeito de proximidade, como por exemplo, a diminuição da  $T_c$ . Além disso, as camadas ferromagnéticas entre as camadas supercondutoras dão uma maior influência sobre a supercondutividade devido a seu campo de dispersão. Os resultados obtidos neste trabalho mostram que, tanto a contribuição supercondutora quanto a magnética dependem da espessura das camadas ferromagnéticas. As possíveis variações quase oscilatórias (saltos ou ruídos) nas trajetórias das curvas de histerese são dadas pela interação na interface SC/FM, gerando uma mudança na disposição dos elétrons dos pares de Cooper (mudança de estado 0 a  $\pi$ ), mostra também a existência das fases de vórtices magnéticos entre os valores  $H_{C1}$  e  $H_{C2}$ , onde há uma transição entre a fase de vórtice sólido e a fase líquida. Observamos também um comportamento anômalo na resposta supercondutora do sistema Nb/NiFe de maior espessura da camada magnética (200 Å), atribuído às camadas magnéticas que contribuem com a fusão do estado sólido vórtice no sistema.

*“Effects of Nb buffer layer on superconducting and magnetic behavior of IrMn/NiFe/Nb/NiFe spin-valves”*

U. D. Chacón Hernandez<sup>1</sup>, M. A. Sousa<sup>1</sup>, J. Litterst<sup>2</sup>, V. P. Nascimento<sup>3</sup>, and E. Baggio-Saitovitch<sup>1</sup>.

<sup>1</sup>Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro, 22290-180, Brazil

<sup>2</sup>Institut für Physik der Kondensierten Materie, Technische Universität Braunschweig, Braunschweig, D-38106, Germany

<sup>3</sup>Departamento de Física, Universidade Federal do Espírito Santo, Vitória, 29075-910, Brazil

IrMn/NiFe/Nb/NiFe spin-valves have been grown on Ta and Nb buffer layers. A reduction of the superconducting transition temperature ( $T_c$ ) of the Nb spacer layer has been observed by transport measurements when Nb is used as buffer layer. Magnetic hysteresis measurements and X-ray diffraction experiments further indicated that the Nb buffer layer can cause a change of the exchange bias field presumably due to higher degree of (200) preferred orientation in IrMn promoted by the buffer layer. The reduction of  $T_c$  of the Nb spacer in these spin-valves is attributed to the stray fields from domain walls due to domain rearrangement in NiFe.

Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Volume 390, 15 September 2015, Pages 114-117

*“Effect of interface roughness on superconducting transition temperatures of Nb/Co multilayers”*

L.Y. Liu<sup>a</sup>, U.D. Chacón Hernandez<sup>b</sup>, Y.T. Xing<sup>c</sup>, N.M. Sugihiro<sup>a</sup>, D. Haeussler<sup>d</sup>, E. Baggio-Saitovitch<sup>b</sup>, W. Jäger<sup>d</sup>, I.G. Solórzano<sup>a</sup>.

<sup>a</sup> DEQM, Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, Brasil

<sup>b</sup> Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro 22290-180, Brasil

<sup>c</sup> Instituto de Física, Universidade Federal Fluminense, Niterói 24210-346, Brasil

<sup>d</sup> Institute for Materials Science, Christian-Albrechts Universittzu Kiel, Germany

Superconductor (SC)/ferromagnet (FM) Nb/Co multilayers have been produced by magnetron-sputtering with a 100 nm thickness of Nb and 5, 10, and 20 nm of Co. The superconducting properties have been investigated by electric transport measurements. It was found that the thicker Co layers decrease the superconducting transition temperature ( $T_c$ ) less than the thinner ones. In order to understand this unexpected behavior, the microstructure of the layers has been investigated by means of Atomic Force Microscopy (AFM), Transmission Electron Microscopy (TEM) and by energy-dispersive X-ray spectroscopy line scan analyses in scanning TEM (STEM) mode. It was found that the decisive parameter which determines the effect of magnetic layers on  $T_c$  of the superconducting layers is not only the roughness ( $R$ ), but the ratio of the roughness to thickness ( $d_{Co}$ ) of the magnetic Co layer,  $\delta = R/d_{Co}$ . For  $\delta > 1$  the magnetic stray field of the magnetic layers is the main reason for the  $T_c$  reduction.

Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Volume 401, 1 March 2016, Pages 242-247



## Effects of Nb buffer layer on superconducting and magnetic behavior of IrMn/NiFe/Nb/NiFe spin-valves



U.D. Chacón Hernandez <sup>a</sup>, M.A. Sousa <sup>a,\*</sup>, F.J. Litterst <sup>b</sup>, V.P. Nascimento <sup>c</sup>,  
E. Baggio-Saitovitch <sup>a</sup>

<sup>a</sup> Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro 22290-180, Brazil

<sup>b</sup> Institut für Physik der Kondensierten Materie, Technische Universität Braunschweig, Braunschweig 38106, Germany

<sup>c</sup> Departamento de Física, Universidade Federal do Espírito Santo, Vitória 29075-910, Brazil

### ARTICLE INFO

#### Article history:

Received 19 March 2015

Received in revised form

20 April 2015

Accepted 22 April 2015

Available online 23 April 2015

### ABSTRACT

IrMn/NiFe/Nb/NiFe spin-valves have been grown on Ta and Nb buffer layers. A reduction of the superconducting transition temperature ( $T_c$ ) of the Nb spacer layer has been observed by transport measurements when Nb is used as buffer layer. Magnetic hysteresis measurements and X-ray diffraction experiments further indicated that the Nb buffer layer can cause a change of the exchange bias field presumably due to higher degree of (200) preferred orientation in IrMn promoted by the buffer layer. The reduction of  $T_c$  of the Nb spacer in these spin-valves is attributed to the stray fields from domain walls due to domain rearrangement in NiFe.

© 2015 Elsevier B.V. All rights reserved.

### 1. Introduction

The interest in superconductor/ferromagnet (SC/FM) layer hybrids, i.e., structures with interplay between superconductivity and ferromagnetism has increased considerably in the last years both from theoretical and applied aspects [1]. This is essentially connected with the incompatible nature of magnetism and superconductivity. However, several works have drawn attention to the existence of ferromagnetism and superconductivity in sundry systems [2]. Peña et al. have synthesized structures containing FM/SC interfaces composed of  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  (FM) and  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (SC) and found a magnetoresistance in excess of 1000%, which is directly associated with the superconductivity of the  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  layer [3]. Stamopoulos and Pissas, studying  $\text{La}_{0.60}\text{Ca}_{0.40}\text{MnO}_3/\text{Nb}$  and  $\text{FePt}/\text{Nb}$  bilayers and  $[\text{La}_{0.33}\text{Ca}_{0.67}\text{MnO}_3/\text{La}_{0.60}\text{Ca}_{0.40}\text{MnO}_3]_{15}/\text{Nb}$  multilayers have found that without an applied magnetic field the multidomain configuration of the FM layer supports the nucleation of superconductivity [4]. In contrast the superconductivity is suppressed, if the FM layer is saturated in monodomain state. Oscillations of induced magnetization in a SC/FM heterostructure due to Andreev effect were reported by Kharitonov et al. [5].

Conventional spin valves are used in storage devices [6,7]. Therefore a spin valve with superconducting spacer, i.e., consisting of two FM layers separated by a SC layer and an AF layer in contact with one of the FM layers, appears as highly interesting structure

\* Corresponding author.

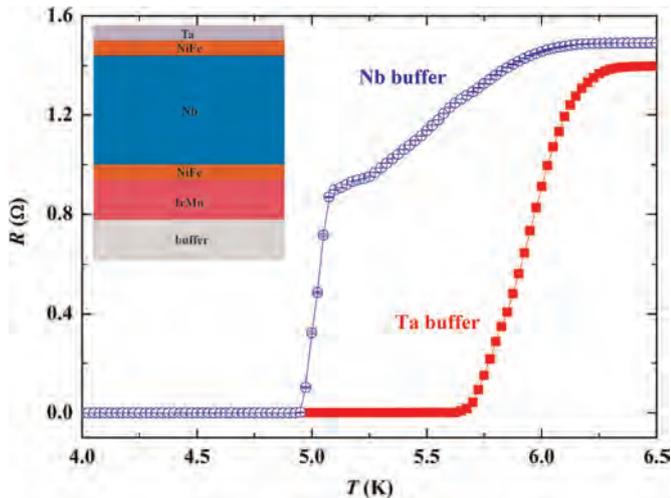
E-mail address: [marcossharp@gmail.com](mailto:marcossharp@gmail.com) (M.A. Sousa).

for the study of interplay between superconductivity and ferromagnetism. In this case, the magnetic moments of one FM layer (adjacent to the AF layer) are “pinned” via exchange bias while the other FM layer is free to rotate [8]. For example, Gu et al. investigated  $\text{CuNi}/\text{Nb}/\text{CuNi}/\text{FeMn}$  spin valves, by magnetometry and resistance measurements as a function of temperature and magnetic field and observed that  $T_c$  depends on whether the FM layers are aligned parallel (P) or antiparallel (AP), i.e., the  $T_c$  is higher (lower) when the FM layers are AP (P) aligned [7], an effect also found by other authors [8–11].

While several papers on spin valves with superconducting spacer are focused on the nature of the dependence of the superconducting transition temperature on the alignment between the FM layers, little attention has been devoted to understand the influence of the buffer layer on the superconducting and magnetic properties of these systems. Particularly when using Nb as buffer layer, unusual magnetic properties have been observed compared to other buffer materials [12]. Thus, in the present work, we want to investigate the effects of the Nb buffer layer on the magnetic properties of the buffer/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta structure.

### 2. Material and methods

Buffer/IrMn(150 Å)/NiFe(50 Å)/Nb(500 Å)/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å) spin valves, composed from buffer, IrMn, NiFe, Nb, and Ta polycrystalline layers, were deposited by magnetron sputtering onto naturally oxidized Si(111) single-crystalline substrates at room temperature, with Ta(150 Å) or Nb(150 Å) used as buffer layers



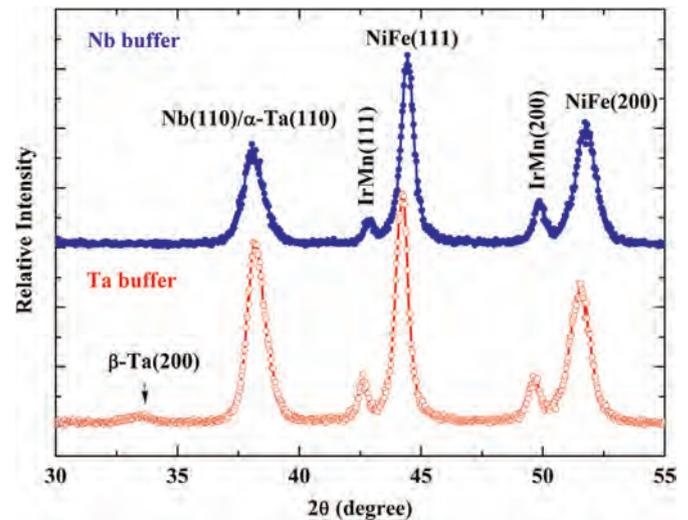
**Fig. 1.** The resistance versus temperature curves for the buffer/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta spin valves with Nb (circles) and Ta buffer layers (square). The curve for the spin valve with Nb buffer layer indicates two steps in the superconducting transition. The structures of the sample are schematically shown in the inset.

(see Fig. 1). The samples were named corresponding to the different buffer layers:  $S_{Ta}$  and  $S_{Nb}$ , respectively. The base pressure before preparation was  $4.0 \times 10^{-8}$  Torr, whereas the Ar working pressure during deposition was 3 mTorr. Commercial Ta,  $Ni_{81}Fe_{19}$ ,  $Ir_{20}Mn_{80}$ , and Nb targets with 99.99% purity were used. The Ta or Nb buffer layers were chosen to grow over the substrate because they favor the growth of the (111) textured fcc-IrMn [13]. After, a 50 Å thick Ta capping layer was deposited in order to limit oxidation. All spin valves were grown under a static magnetic field of 400 Oe applied in the plane of the substrate to induce a unidirectional anisotropy. The deposition rates under these conditions were 0.54, 0.47, 0.69, and 1.30 Å/s, for Ta, Nb, IrMn, and NiFe, respectively.

### 3. Results and discussion

Fig. 1 shows the dependence of resistance on temperature ( $R$  vs  $T$ ), under zero external magnetic field, for both spin valves studied in this work. Transport measurements on the spin valves were performed using the standard four-point method, in a commercial PPMS DynaCool system from Quantum Design. It can be clearly seen that the  $R$  vs  $T$  characteristics are quite different. The curve of  $S_{Ta}$  is typical for these systems with Nb thickness around 500 Å [7], presenting a  $T_c$  of 5.9 K. For  $S_{Nb}$ ,  $T_c$  was reduced to 5.3 K and, unexpectedly, the transition is formed by two well-defined regions (two steps) with different features and slopes. Here it is important to point out that the transitions in these curves are related only to the Nb spacer layer, because the  $T_c$  of the thinner Nb buffer layer (150 Å) is about 2.23 K [14] and may be suppressed or reduced by the IrMn layer, as was observed in IrMn/Nb bilayers by Wu et al. [15].

At this point, it becomes of interest to analyze whether there is some change in the crystalline structure or the degree of texture induced by distinct buffer layers during the growth of the spin valves. Fig. 2 shows X-ray diffraction scans of the spin valves, where Cu  $K\alpha$  radiation was used. In both patterns, there can be identified diffraction peaks at about  $2\theta = 38.2^\circ$ , which can have contributions from the (110) reflections of the bcc Nb and possible bcc phases that may exist in the Ta layers, since Nb and Ta present bcc structures which have standard (110) reflections close to this angular position ( $2\theta \sim 38.305^\circ$ ). The main contribution, however,



**Fig. 2.** X-ray diffraction patterns for the spin valves with Nb and Ta buffer layer, respectively.

certainly comes from the Nb spacer layer. The peak at about  $2\theta = 33.5^\circ$  is attributed to the (200) reflection of the tetragonal  $\beta$ -Ta phase. This phase is formed in the buffer layer of sample  $S_{Ta}$ , since its peak does not appear in the pattern of  $S_{Nb}$ . The formation of  $\beta$ -Ta phase is also found when Ta is deposited on  $SiO_2$  or naturally oxidized Si substrates [16]. The (111) and (200) reflections of fcc-IrMn are peaked at  $2\theta = 42.95^\circ$  and  $49.85^\circ$ , respectively, for  $S_{Nb}$ ; and at  $2\theta = 42.62^\circ$  and  $49.61^\circ$ , respectively, for  $S_{Ta}$ ; these peaks are shifted to higher angles when compared to the standard bulk IrMn:  $2\theta = 41.40^\circ$  and  $48.17^\circ$ , respectively. Observing the intensities of the fcc IrMn peaks, one can detect a preferred (200) orientation for the IrMn layers that is stronger for sample  $S_{Nb}$ , i.e., the intensity of the peak corresponding to the (111) reflection for  $S_{Nb}$  is smaller when compared to same peak for  $S_{Ta}$ . Using the Bragg law, it is possible to infer that the out-of-plane interplanar distances  $d_{111}$  and  $d_{200}$  are contracted ( $\Delta d/d \sim 3\%$ ) when compared to the unstressed bulk structure; effect more pronounced for  $S_{Nb}$ . In fact, a structural refinement of the x-ray diffraction profile using a model including disorder parameters may allow a more accurate determination of the lattice parameters [17]. However, such a procedure is beyond the scope of this work. NiFe seems to grow without a preferred orientation and without strain. Thus, from the structural point of view the samples are very similar; the single significant structural difference between them is the fact that the Nb buffer layer favors the (200) preferred orientation in the IrMn layer.

To establish the connection between the results of transport measurements and the magnetic behavior of the superconducting state of the Nb(500 Å) layer in the spin valves, we have performed magnetic hysteresis measurements. Figs. 3 and 4 show the hysteresis loops of  $S_{Nb}$  and  $S_{Ta}$ , measured at 2 and 6 K. Hysteresis loops were measured using a Quantum Design MPMS-5 S SQUID-magnetometer. During measurements the external magnetic field was applied in same direction of the field as used during the growth process. At 6 K the hysteresis curves of both systems have similar shape and reflect a typical spin-valve behavior [8]. These curves are composed by two superimposed loops: one related to the soft free NiFe layer and other associated with the harder exchange-biased pinned layer. The features of these loops can be revealed if one follows the reversion of the magnetization between two opposite saturation conditions. When the sample is saturated in positive fields the magnetic layers are aligned parallel. Decreasing the field, the harder pinned layer starts to reverse slowly. Near zero field, the soft free layer reverts suddenly, while the pinning

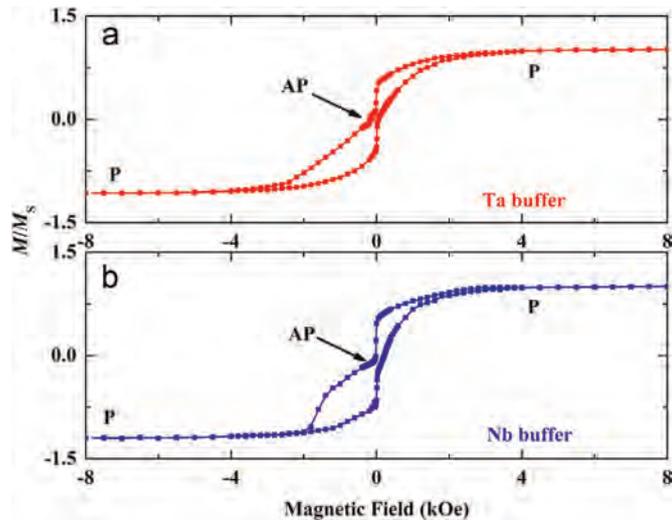


Fig. 3. Hysteresis loops of buffer/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta spins valves measured at  $T=6$  K for Ta (a) and Nb buffer layer (b), with the applied field parallel to the unidirectional anisotropy axis of the IrMn/NiFe interface.

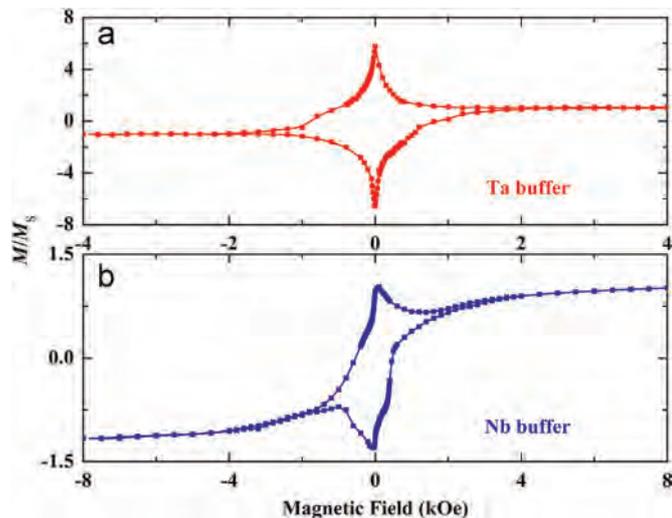


Fig. 4. Hysteresis loops of buffer/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta spins valves measured at  $T=2$  K with Ta (a) and Nb buffer layer (b), with the applied field parallel to the unidirectional anisotropy axis of the IrMn/NiFe interface.

layer is still in the beginning of the reversion. At this moment the magnetic layers have an AP-like alignment. Increasing the field in the opposite way (negative fields), the pinned layer complete its reversion slowly. After that, when the sample is saturated in negative fields the alignment is P again [6,9]. In order to estimate some magnetic parameters from the curves, the derivatives of the descending and ascending branches of the loop were calculated [18–20]. The coercive field ( $H_C$ ) of the free layer is around 15 Oe, while for the pinned layer the values are:  $(564 \pm 10)$  Oe and  $(660 \pm 10)$  Oe for  $S_{Ta}$  and  $S_{Nb}$ , respectively. At the same time, the exchange bias field ( $H_{EB}$ ) estimated for  $S_{Ta}$  and  $S_{Nb}$  are: and  $(614 \pm 10)$  Oe and  $(648 \pm 10)$  Oe, respectively. As expected, these extracted parameters are very similar since  $S_{Ta}$  and  $S_{Nb}$  have almost the same structural characteristics; the small differences between them can be related to the different degrees of (200) preferred orientation. This result is in agreement with several works dedicated to systems with exchange bias. For instance, Öksüzoglu et al. described a correlation between texture and magnetic properties in Ta/NiFe/IrMn/CoFe/Ta structures due to the effect of Ta buffer and NiFe seed layers [21]. Castro et al.

investigated NiFe/IrMn/Co trilayers grown on Ta or Cu seed layers and found that crystalline texture influences the trilayers' magnetic properties [22]. This way, as discussed above, the difference of the  $H_C$  and  $H_{EB}$  values for  $S_{Nb}$  when compared to those for  $S_{Ta}$ , obtained at 6 K, may be attributed to the degree of (200) preferred orientation of the IrMn layer in  $S_{Nb}$ . But this cannot explain the results below the  $T_C$  and the transport measurements.

In order to explain the results below  $T_C$ , as well as the transport measurements, hysteresis curves have been recorded at 2 K from  $S_{Ta}$  and  $S_{Nb}$  spin valves and they are presented in Fig. 4(a) and (b), respectively. In Fig. 4(a), we have a characteristic loop of a type II superconductor, i.e., at this temperature the response to magnetic field is dominated by the contribution from the Nb superconductor and “pinning” in the IrMn/NiFe is minimal. The shape of this curve is related to vortex processes of a type II superconductor: vortex penetration, vortex pinning, and vortex creation–annihilation [23]. This fact discards the possibility to estimate the FM parameters with accuracy ( $H_C$  and  $H_{EB}$ ). The curve in Fig. 4(b) is a superposition of the contribution of the FM and SC layers. However, the loop is not substantially shifted along the field axis ( $H_{EB}$  is near zero). This can be also due to the superconductor contribution that is masking the exchange bias, but may also have another origin. According to Wu et al. [24] the magnetostatic interactions between Nb electrodes and an IrMn layer can cause fluctuations of  $H_{EB}$  and  $H_C$  in IrMn/NiFe bilayers. From a series of magnetoresistance measurements they found that  $H_{EB}$  and  $H_C$  of the bilayers vary in irregular way below the transition temperature of Nb; on the other hand, these fields remain constant above the transition temperature of Nb. The authors attributed this behavior to an instability of the dynamic spin structure of the AF layer provoked by the Nb, which also affects, indirectly, the interaction at the IrMn/NiFe interface, i.e., the exchange bias. The dependence of the exchange bias behavior on the AF dynamic spin structure can be found in the literature [25–30].

In addition, it is expected that the NiFe FM domains are directly aligned by the AF layer in a domain-by-domain coupling; a behavior found in a LaFeO<sub>3</sub>/Co bilayer [31]. Consequently, the domain structure of the NiFe layer is influenced by the Nb buffer layer, too. This scenario will also help to explain the two steps behavior that appears in the  $R$  vs  $T$  curve for  $S_{Nb}$ . Moreover, note that as discussed by Wu et al. [24] the proximity effect between Nb and IrMn cannot be excluded. In any case, one might expect that this effect can also influence the spin structure of the IrMn.

Furthermore, the magnetic moment of  $S_{Ta}$  increases when the temperature is reduced from 6 K to 2 K. In agreement with previous reports [4,32,33] this suggests that the switching effect occurs in low applied magnetic field for  $S_{Ta}$ . This is related to the response of Nb to the stray field of the NiFe layers, as discussed in these reports. It is worth noting that the magnetic moment of  $S_{Nb}$  does not increase when temperature is reduced. Therefore, we can conclude that  $S_{Nb}$  does not exhibit the switching effect in low applied magnetic field.

Since the transport measurements were performed in zero field one may expect the presence of an accentuated domain structure in the NiFe layers, and consequently, domain walls. For the case of a thin NiFe layer, domain walls must be predominantly of Néel-type. Domain walls are sources of stray fields [1]. In Co/Nb/Co trilayers stray fields are considered to be predominantly responsible for the suppression of superconductivity [34]. It is clear that these fields from the static domain configuration only cannot explain the reduction and the two steps of the superconducting transition, because the two spin valves have the same NiFe/Nb/NiFe structure. Steiner and Ziemann observed an alteration of the Nb transition temperature, when rearranging the domain configurations in the FM layer in FM/SC bilayers [35]. There also were found indications that movements or rearrangement of FM

domains impelled by the Meissner effect of the SC can induce resistance anomalies in FM/SC hybrids [36]. Therefore, in our case, the behavior of the curve close to the transition temperature for the spin valve with Nb buffer, can be attributed to the stray fields from domain walls in the domain rearrangement in NiFe provoked by a dynamic spin structure in the IrMn due to interaction with the Nb buffer.

An alternative interpretation of our results may be found in the previous conclusions of Cheng and Stearns [37]. They observed that the superconducting transition in Nb/Cr multilayers occurs in two steps for Nb thickness smaller than 1000 Å. These authors concluded that the areas under the curves of the second steps increased linearly with the number of interfaces Nb/Cr, suggesting that this may be related with them. However, in these systems there are only interactions between SC and AF layers and there are no FM layers. Therefore, in our case, it is reasonable to conclude that the interactions between the Nb buffer and IrMn layers, and the FM and AF bulk domain structures play an important role in the origin of the two steps in the transition and for the reduction of  $T_c$ .

#### 4. Conclusions

In conclusion, we have investigated the superconducting transition temperature behavior of Nb(500 Å) in two buffer/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta spin valves with Ta or Nb buffer layers and have demonstrated that the Nb buffer layer can significantly influence the superconducting and magnetic properties in these structures. In transport measurements, we can see two changes of slope in the  $R(T)$  curves, indicating two steps in the superconducting transition and  $T_c$  smaller than that of the spin valve with Ta buffer. This is attributed to the dynamical spin structure in the IrMn that rearranges the domains of the FM in contact with the SC, presumably promoted by magnetostatic interactions between the Nb buffer and IrMn layers. Furthermore, the little difference between  $H_c$  and  $H_{EB}$  values of the spin valves is due the Nb buffer layer induce a higher degree of (200) preferred orientation in the IrMn layer.

#### Acknowledgements

The authors thank Dr. D. Menzel (TU Braunschweig) for SQUID measurements and Professor J. Geshev for helpful discussions. This work was supported by the Brazilian agencies CNPq (Project nos. 151440/2013-1, 249836/2013-0 and 308977/2012-2), by FAPERJ (Projects E-26/111.124/2013, E-26/111.687/2013, and E-26/102.985/2011), by CAPES and DAAD (Program PROBRAL/DAAD/CAPES No. 389-13), and FAPES.

#### References

- [1] A.I. Buzdin, *Rev. Mod. Phys.* 77 (2005) 935.
- [2] Y.A. Izyumov, Y.N. Proshin, M.G. Khusainov, *Phys.-Usp.* 45 (2002) 109.
- [3] V. Peña, Z. Sefrioui, D. Arias, C. Leon, J. Santamaria, J.L. Martinez, S.G.E. te Velthuis, A. Hoffmann, *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005) 057002.
- [4] D. Stamopoulos, M. Pissas, *Phys. Rev. B* 73 (2006) 132502.
- [5] M. Yu Kharitonov, A.F. Volkov, K.B. Efetov, *Phys. Rev. B* 73 (2006) 054511.
- [6] L.R. Tagirov, *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999) 2058.
- [7] J.Y. Gu, C.-Y. You, J.S. Jiang, J. Pearson, Ya. B. Bazaliy, S.D. Bader, *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002) 267001.
- [8] A. Potenza, C.H. Marrows, *Phys. Rev. B* 71 (2005) 180503, R.
- [9] I.C. Moraru, W.P. Pratt Jr., N.O. Birge, *Phys. Rev. Lett.* 96 (2006) 037004.
- [10] K. Westerholt, D. Sprungmann, H. Zabel, R. Brucas, B. Hjörvarsson, D. A. Tikhonov, I.A. Garifullin, *Phys. Rev. Lett.* 95 (2005) 097003.
- [11] G. Nowak, H. Zabel, K. Westerholt, I.A. Garifullin, M. Marcellini, A. Liebig, B. Hjörvarsson, *Phys. Rev. B* 78 (2008) 134520.
- [12] P.B. Jayathilaka, C.A. Bauer, D.V. Williams, M.C. Monti, J.T. Markert, C.W. Miller, *J. Appl. Phys.* 107 (2010) 09B101.
- [13] D. Lacour, O. Durand, J.-L. Maurice, H. Jaffrès, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, J. Humbert, A. Vaurès, J. Magn. Mater. 270 (2004) 403.
- [14] A. Singh, C. Stürgers, H. v Löhneysen, *Phys. Rev. B* 75 (2007) 024513.
- [15] B.L. Wu, Y.M. Yang, Z.B. Guo, Y.H. Wu, J.J. Giu, *Appl. Phys. Lett.* 103 (2013) 152602.
- [16] H.R. Liu, T.L. Ren, B.J. Qu, L.T. Liu, W.J. Ku, W. Li, *Thin Solid Films* 441 (2003) 111.
- [17] E.E. Fullerton, I.K. Schuller, H. Vanderstraeten, Y. Bruynseraede, *Phys. Rev. B* 45 (1992) 9292.
- [18] V.I. Zdravkov, D. Lenk, R. Morari, A. Ullrich, G. Obermeier, C. Müller, H.-A. Krug von Nidda, A.S. Sidorenko, S. Horn, R. Tidecks, L.R. Tagirov, *Appl. Phys. Lett.* 103 (2013) 062604.
- [19] L. Sun, P.C. Searson, C.L. Chien, *Phys. Rev. B* 71 (2005) 012417.
- [20] A. Harres, R. Cichelerio, L.G. Pereira, J.E. Schmidt, J. Geshev, *J. Appl. Phys.* 114 (2013) 043902.
- [21] R.M. Öksüzoglu, M. Yildirim, H. Cinar, E. Hildebrandt, L. Alff, J. Magn. Mater. 323 (2011) 1827.
- [22] I.L. Castro, V.P. Nascimento, E.C. Passamani, A.Y. Takeuchi, C. Larica, M. Tafur, F. Pelegrini, *J. Appl. Phys.* 113 (2013) 203903.
- [23] E.J. Patiño, M. Aprili, M.G. Blamire, Y. Maeno, *Phys. Rev. B* 87 (2013) 214514.
- [24] B.L. Wu, Y.H. Wu, J.J. Giu, *Appl. Phys. Lett.* 100 (2012) 242602.
- [25] D. Mauri, H.C. Siegmann, P.S. Bagus, E. Kay, *J. Appl. Phys.* 62 (1987) 3047.
- [26] A.P. Malozemoff, *Phys. Rev. B* 35 (1987) 3679.
- [27] N.J. Gökemeijer, J.W. Cai, C.L. Chien, *Phys. Rev. B* 60 (1999) 3033.
- [28] M.D. Stiles, R.D. McMichael, *Phys. Rev. B* 59 (1999) 3722.
- [29] F.Y. Yang, C.L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000) 2597.
- [30] D.N.H. Nam, W. Chen, K.G. West, D.M. Kirkwood, J. Lu, S.A. Wolf, *Appl. Phys. Lett.* 93 (2008) 152504.
- [31] F. Nolting, A. Scholl, J. Stöhr, J.W. Seo, J. Pompeyrine, H. Siegwart, J.-P. Locquet, S. Anders, J. Lüning, E.E. Fullerton, M.F. Toney, M.R. Scheinfein, H.A. Padmore, *Nature* 405 (2000) 767.
- [32] H.Y. Wu, J. Ni, J.W. Cai, Z.H. Cheng, Y. Sun, *Phys. Rev. B* 76 (2007) 024416.
- [33] D. Stamopoulos, N. Moutis, M. Pissas, D. Niarchos, *Phys. Rev. B* 72 (2005) 212514.
- [34] G. Carapella, F. Russo, G. Costabile, *Phys. Rev. B* 78 (2008) 104529.
- [35] R. Steiner, P. Ziemann, *Phys. Rev. B* 74 (2006) 094504.
- [36] S.V. Dubonos, A.K. Geim, K.S. Novoselov, I.V. Grigorieva, *Phys. Rev. B* 65 (2002) 220513.
- [37] Y. Cheng, M.B. Stearns, *J. Appl. Phys.* 67 (1990) 5038.

# Lista de Tabelas

2.1	Relação de alvos usados na preparação das válvulas de <i>spin</i> . . . . .	47
3.1	Energia livre da superfície de cada material usado para produção das válvulas de <i>spin</i> (valores tomados das referências [11, 83]. . . . .	54
4.1	Espessura e rugosidade das camadas <i>buffer</i> , AFM e <i>capping layer</i> das válvulas de <i>spin bottom</i> <i>Si/Ta/IrMn/Co/Nb/Co/Ta</i> . . . . .	61
4.2	Espessuras ( $d$ ) e rugosidades ( $h$ ) das camadas FM1 (camada presa) , SC (camada separadora supercondutora), FM2 (camada livre) das válvulas de <i>spin bottom</i> <i>Si/Ta/IrMn/Co/Nb/Co/Ta</i> calculadas pelo programa WINGIXA. O parâmetro $\chi^2$ indica o erro da medida de cada amostra. . . . .	62
4.3	Comparação dos valores de espessuras ( $d$ ) e rugosidades ( $h$ ) das válvulas de <i>spin top</i> e <i>bottom</i> . . . . .	62
4.4	Espessura ( $d_x$ ) e rugosidade ( $h_x$ ) das camadas <i>buffer</i> , AFM e <i>capping layer</i> das válvulas de <i>spin Top</i> <i>Si/Ta/NiFe/Nb/NiFe/IrMn/Ta</i> . . . . .	79
4.5	Espessuras ( $d$ ) e rugosidades ( $h$ ) das camadas FM2 (camada livre), SC (camada separadora SC), FM1 (camada presa) das válvulas de <i>spin top</i> <i>Si/Ta/NiFe/Nb/NiFe/IrMn/Ta</i> calculadas pelo programa WINGIXA. . . . .	80
4.6	Espessura ( $d_x$ ) e rugosidade ( $h_x$ ) das camadas <i>buffer</i> , AFM e <i>capping layer</i> das válvulas de <i>spin bottom</i> <i>Si/Ta/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta</i> . . . . .	80
4.7	Espessuras ( $d$ ) e rugosidades ( $h$ ) das camadas FM1, SC, FM2 das válvulas de <i>spin bottom</i> <i>Si/Ta/IrMn/NiFe/Nb/NiFe/Ta</i> calculadas pelo programa WINGIXA. . . . .	80

# Referências

- [1] N. F. Mott.  
The Electrical Conductivity of Transition Metals.  
*Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 153(880):699–717, 1936.
- [2] E. Hirota, H. Sakakima, and K. Inomata.  
*Giant Magneto-Resistance Devices*.  
Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2002.
- [3] S. A. Wolf, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger.  
Spintronics. A retrospective and perspective.  
*IBM Journal of Research and Development*, 50:101–110, 2006.
- [4] Albert Fert.  
Nobel Lecture: Origin, development, and future of spintronics.  
*Rev. Mod. Phys.*, 80:1517–1530, Dec 2008.
- [5] V. I. Zdravkov, J. Kehrle, G. Obermeier, D. Lenk, H.-A. Krug von Nidda, C. Müller, M. Yu. Kupriyanov, A. S. Sidorenko, S. Horn, R. Tidecks, and L. R. Tagirov.  
Experimental observation of the triplet spin-valve effect in a superconductor-ferromagnet heterostructure.  
*Phys. Rev. B*, 87:144507, Apr 2013.
- [6] Ya.V. Fominov, A.A. Golubov, T.Yu. Karminskaya, M.Yu. Kupriyanov, R.G. Deminov, and L.R. Tagirov.  
Superconducting triplet spin valve.  
*JETP Letters*, 91(6):308–313, 2010.
- [7] P. V. Leksin, N. N. Garif’yanov, A. A. Kamashev, Ya. V. Fominov, J. Schumann, C. Hess, V. Kataev, B. Büchner, and I. A. Garifullin.  
Superconducting spin-valve effect and triplet superconductivity in  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Cu}/\text{Fe2}/\text{Cu}/\text{Pb}$  multilayer.  
*Phys. Rev. B*, 91:214508, Jun 2015.
- [8] N. Banerjee, C. B. Smiet, R. G. J. Smits, A. Ozaeta, F. S. Bergeret, M. G. Blamire, and J. W. A. Robinson.

- Evidence for spin selectivity of triplet pairs in superconducting spin valves.  
*Nat Commun*, 6, Jan 2014.
- [9] J. Y. Gu, C.-Y. You, J. S. Jiang, J. Pearson, Ya. B. Bazaliy, and S. D. Bader.  
Magnetization-Orientation Dependence of the Superconducting Transition Temperature in  
the Ferromagnet-Superconductor-Ferromagnet System: CuNi/Nb/CuNi.  
*Phys. Rev. Lett.*, 89:267001, Dec 2002.
- [10] Ion C. Moraru, W. P. Pratt, and Norman O. Birge.  
Magnetization-Dependent  $T_c$  Shift in Ferromagnet/Superconductor/Ferromagnet Trilayers with a Strong  
Anisotropy.  
*Phys. Rev. Lett.*, 96:037004, Jan 2006.
- [11] A. P. Guimarães.  
*Principles of Nanomagnetism*.  
Springer, Berlin, 2009.
- [12] P. Isberg, P. Granberg, E. B. Svedberg, B. Hjörvarsson, R. Wäppling, and P. Nordblad.  
Structure and magnetic properties of Fe/V (110) superlattices.  
*Phys. Rev. B*, 57:3531–3538, Feb 1998.
- [13] E. Burstein, M.L. Cohen, D. L. Mills, and P.J. Stiles.  
*Contemporary Concepts of Condensed Matter Science, Nanomagnetism, Ultrathin Films,  
Multilayers and Nanostructures*.  
Elsevier, 2006.
- [14] Tao Lin, M. A. Tomaz, M. M. Schwickert, and G. R. Harp.  
Structure and magnetic properties of Ru/Fe (001) multilayers.  
*Phys. Rev. B*, 58:862–868, Jul 1998.
- [15] L. Eckertová.  
*Physics of Thin Films*.  
Plenum Press, New York, 1986.
- [16] G. Cao.  
*Nanostructures & Nanomaterials*.  
Imperial College Press, London, 2004.
- [17] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet,  
A. Friederich, and J. Chazelas.  
Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices.  
*Phys. Rev. Lett.*, 61:2472–2475, Nov 1988.
- [18] C L Dennis, R P Borges, L D Buda, U Ebels, J F Gregg, M Hehn, E Jouguelet, K Ounadjela,  
I Petej, I L Prejbeanu, and M J Thornton.  
The defining length scales of mesomagnetism: a review.  
*Journal of Physics: Condensed Matter*, 14(49):R1175, 2002.
- [19] A. Fert and I. A. Campbell.

- Two-current conduction in nickel.  
*Phys. Rev. Lett.*, 21:1190–1192, Oct 1968.
- [20] B. Loegel and F. Gautier.  
Origine de la resistivite dans le cobalt et ses alliages dilues.  
*Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 32(12):2723–2735, 1971.
- [21] J. W. F. Dorleijn and A. R. Miedema.  
The residual resistivities of dilute iron-based alloys in the two-current model.  
*Journal of Physics F: Metal Physics*, 7(1):L23, 1977.
- [22] A. Fert and I. A. Campbell.  
Electrical resistivity of ferromagnetic nickel and iron based alloys.  
*Journal of Physics F: Metal Physics*, 6(5):849, 1976.
- [23] B. Dieny.  
Giant magnetoresistance in spin-valve multilayers.  
*Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 136(3):335–359, 1994.
- [24] J. Nogués and Ivan K. Schuller.  
Exchange Bias.  
*Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 192(2):203–232, 1999.
- [25] A. Harres, R. Cicheler, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, and J. Geshev.  
Remanence plots technique extended to exchange bias systems.  
*Journal of Applied Physics*, 114(4), 2013.
- [26] L. Sun, P. C. Searson, and C. L. Chien.  
Asymmetrical hysteresis in exchange-biased multilayers with out-of-plane applied fields.  
*Phys. Rev. B*, 71:012417, Jan 2005.
- [27] C. Chappert, A. Fert, and F. N. Van Dau.  
The Emergence of Spin Electronics in Data Storage.  
*Nature Materials*, 6(11):813–823, 2007.
- [28] W. Alayo, Y. T. Xing, and E. Baggio-Saitovitch.  
Magnetization studies in IrMn/Co/Ru/NiFe spin valves with weak interlayer coupling.  
*Journal of Applied Physics*, 106(11):–, 2009.
- [29] P. Bruno and C. Chappert.  
Oscillatory coupling between ferromagnetic layers separated by a nonmagnetic metal spacer.  
*Phys. Rev. Lett.*, 67:1602–1605, Sep 1991.
- [30] B. D. Schrag, A. Anguelouch, S. Ingvarsson, Gang Xiao, Yu Lu, P. L. Trouilloud, A. Gupta, R. A. Wanner, W. J. Gallagher, P. M. Rice, and S. S. P. Parkin.  
Néel “orange-peel” coupling in magnetic tunneling junction devices.  
*Applied Physics Letters*, 77(15):2373–2375, 2000.

- [31] L. Néel.  
-.  
*C. R. Acad. Sci., Paris*, 255:1676, 1962.
- [32] J. C. S. Kools, W. Kula, Daniele Mauri, and Tsann Lin.  
Effect of finite magnetic film thickness on néel coupling in spin valves.  
*Journal of Applied Physics*, 85(8):4466–4468, 1999.
- [33] B. D. Schrag, A. Anguelouch, Gang Xiao, P. Trouilloud, Yu Lu, W. J. Gallagher, and S. S. P. Parkin.  
Magnetization reversal and interlayer coupling in magnetic tunneling junctions.  
*Journal of Applied Physics*, 87(9):4682–4684, 2000.
- [34] A. Anguelouch, B. D. Schrag, Gang Xiao, Yu Lu, P. L. Trouilloud, R. A. Wanner, W. J. Gallagher, and S. S. P. Parkin.  
Two-dimensional magnetic switching of micron-size films in magnetic tunnel junctions.  
*Applied Physics Letters*, 76(5):622–624, 2000.
- [35] C. Poole, H. A. Farach, R. J. Creswick, and R. Prozorov.  
*Superconductivity*.  
ELSEVIER, 2007.
- [36] A. A. Abrikosov.  
On the Magnetic Properties of Superconductors of the Second Group .  
*Sov. Phys. JETP*, 5:1174–1182, 1957.  
*Zh.Eksp.Teor.Fiz.* 32 (1957) 1442-1452.
- [37] H. Brechna, M. A. Allen, and J. K. Cobb.  
Magnetization and Susceptibility Measurements of Polycrystalline Niobium.  
*Journal of Applied Physics*, 42(1):103–105, 1971.
- [38] H. C. Theuerer and J. J. Hauser.  
Getter Sputtering for the Preparation of Thin Films of Superconducting Elements and Compounds.  
*Journal of Applied Physics*, 35(3):554–555, 1964.
- [39] Yuji Asada and Hiroshi Nosé.  
Superconductivity of Niobium Films.  
*Journal of the Physical Society of Japan*, 26(2):347–354, 1969.
- [40] J. Sosniak and G. W. Hull.  
Superconductivity of niobium thin films deposited by dc diode sputtering.  
*Journal of Applied Physics*, 38(11):4390–4392, 1967.
- [41] Junichi Kodama, Mineo Itoh, and Heihachiro Hirai.  
Superconducting transition temperature versus thickness of Nb film on various substrates.  
*Journal of Applied Physics*, 54(7):4050–4054, 1983.
- [42] Leon N. Cooper.

- Bound Electron Pairs in a Degenerate Fermi Gas.  
*Phys. Rev.*, 104:1189–1190, Nov 1956.
- [43] I.A. Chaban.  
Paramagnetic Meissner Effect.  
*Journal of Superconductivity*, 13(6):1011–1017, 2000.
- [44] P. Kostić, B. Veal, A. P. Paulikas, U. Welp, V. R. Todt, C. Gu, U. Geiser, J. M. Williams, K. D. Carlson, and R. A. Klemm.  
Paramagnetic Meissner effect in Nb.  
*Phys. Rev. B*, 53:791–801, Jan 1996.
- [45] Yusheng He, C.M. Muirhead, and W.F. Vinen.  
Paramagnetic Meissner effect in HighTc superconductors (i).  
*Science in China Series A: Mathematics*, 41(6):647–655, 1998.
- [46] F. T. Dias, V. N. Vieira, A. L. Falck, D. L. da Silva, P. Pureur, and J. Schaf.  
Paramagnetic Meissner effect at high fields in YCaBaCuO single crystal.  
*Journal of Physics: Conference Series*, 391(1):012124, 2012.
- [47] F.T. Dias, V.N. Vieira, D.L. Silva, J. Albino Aguiar, D.R.B. Valadão, X. Obradors, T. Puig, F. Wolff-Fabris, and E. Kampert.  
Paramagnetic moments in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> nanocomposite films.  
*Physica C: Superconductivity*, 503:175–177, 2014.
- [48] W. A. C. Passos, P. N. Lisboa-Filho, G. L. Fraga, F. W. Fabris, P. Pureur, and W. A. Ortiz.  
Paramagnetic Meissner effect and magnetic remanence in granular MgB<sub>2</sub>.  
*Brazilian Journal of Physics*, 32:777–779, 09 2002.
- [49] Y. T. Xing, H. Micklitz, E. Baggio-Saitovitch, and T. G. Rappoport.  
Controlled switching between paramagnetic and diamagnetic Meissner effects in superconductor-ferromagnet Pb – Co nanocomposites.  
*Phys. Rev. B*, 80:224505, Dec 2009.
- [50] A. K. Geim, S. V. Dubonos, J. G. S. Lok, M. Henini, and J. C. Maan.  
Paramagnetic Meissner effect in small superconductors.  
*Nature*, 396:144–146, Nov 1998.
- [51] T. M. Rice and M. Sigrist.  
Comment on “Paramagnetic Meissner effect in Nb”.  
*Phys. Rev. B*, 55:14647–14648, Jun 1997.
- [52] Manfred Sigrist and T. M. Rice.  
Unusual paramagnetic phenomena in granular high-temperature superconductors—A consequence of d– wave pairing?  
*Rev. Mod. Phys.*, 67:503–513, Apr 1995.
- [53] A Terentiev, DB Watkins, De LE Long, DJ Morgan, and JB Ketterson.

- Paramagnetic relaxation and Wohleben effect in field-cooled Nb thin films.  
*Physical Review B*, 60(2):R761, 1999.
- [54] A. I. Buzdin.  
Proximity effects in superconductor-ferromagnet heterostructures.  
*Rev. Mod. Phys.*, 77:935–976, Sep 2005.
- [55] E. A. Demler, G. B. Arnold, and M. R. Beasley.  
Superconducting proximity effects in magnetic metals.  
*Phys. Rev. B*, 55:15174–15182, Jun 1997.
- [56] Tao Zou, Hong-Ye Wu, Zhao-Hua Cheng, and Young Sun.  
Magnetization modification by superconductivity in Nb/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Nb trilayers.  
*Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 322(1):169–172, 2010.
- [57] I. A. Garifullin, D. A. Tikhonov, N. N. Garif'yanov, L. Lazar, Yu. V. Goryunov, S. Ya. Khlebnikov, L. R. Tagirov, K. Westerholt, and H. Zabel.  
Re-entrant superconductivity in the superconductor/ferromagnet V/Fe layered system.  
*Phys. Rev. B*, 66:020505, Jul 2002.
- [58] A. Potenza and C. H. Marrows.  
Superconductor-ferromagnet CuNi/Nb/CuNi trilayers as superconducting spin-valve core structures.  
*Phys. Rev. B*, 71:180503, May 2005.
- [59] D. Stamopoulos, E. Manios, and M. Pissas.  
Enhancement of superconductivity by exchange bias.  
*Phys. Rev. B*, 75:014501, Jan 2007.
- [60] D. Stamopoulos, N. Moutis, M. Pissas, and D. Niarchos.  
Effective ferromagnetic coupling between a superconductor and a ferromagnet in LaCaMnO/Nb hybrids.  
*Phys. Rev. B*, 72:212514, Dec 2005.
- [61] A. K. Suzka, F. S. Bergeret, and A. Berger.  
Domain-wall-induced magnetoresistance in pseudo-spin-valve/superconductor hybrid structures.  
*Phys. Rev. B*, 85:024529, Jan 2012.
- [62] I. Sosnin, H. Cho, V. T. Petrashov, and A. F. Volkov.  
Superconducting Phase Coherent Electron Transport in Proximity Conical Ferromagnets.  
*Phys. Rev. Lett.*, 96:157002, Apr 2006.
- [63] F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov.  
Odd triplet superconductivity and related phenomena in superconductor-ferromagnet structures.  
*Rev. Mod. Phys.*, 77:1321–1373, Nov 2005.

- [64] Peter Fulde and Richard A. Ferrell.  
Superconductivity in a strong spin-exchange field.  
*Phys. Rev.*, 135:A550–A563, Aug 1964.
- [65] E. J. Patiño, C. Bell, and M. G. Blamire.  
Sudden critical current drops induced in s/f structures.  
*The European Physical Journal B*, 68(1):73–77, 2009.
- [66] H. W. Weber, E. Seidl, C. Laa, E. Schachinger, M. Prohammer, A. Junod, and D. Eckert.  
Anisotropy effects in superconducting niobium.  
*Phys. Rev. B*, 44:7585–7600, Oct 1991.
- [67] J. W. A. Robinson, S. Piano, G. Burnell, C. Bell, and M. G. Blamire.  
Critical Current Oscillations in Strong Ferromagnetic  $\pi$  Junctions.  
*Phys. Rev. Lett.*, 97:177003, Oct 2006.
- [68] M. Tinkham.  
*Introduction to Superconductivity*.  
Dover Books on Physics Series. Dover Publications, 1996.
- [69] E. J. Patiño, M. Aprili, M. G. Blamire, and Y. Maeno.  
Vortex flipping in superconductor/ferromagnet spin-valve structures.  
*Phys. Rev. B*, 87:214514, Jun 2013.
- [70] U.D. Chacón Hernández.  
Propriedades magnéticas de sistemas híbridos de multicamadas supercondutor / ferromagneto (SC/FM).  
Master's thesis, CBPF- Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro BR, Rio de Janeiro, 2011.
- [71] H. Lüth.  
*Solid Surfaces, Interfaces and Thin Films*.  
Springer, Heidelberg, 4th. ed edition, 2001.
- [72] A. van der Lee.  
Grazing incidence specular reflectivity: theory, experiment, and applications.  
*Solid State Sciences*, 2(2):257–278, 2000.
- [73] X. S. Wu, Q. S. Bie, Z. S. Lin, A. Hu, H. R. Zhai, and S. S. Jiang.  
Grazing incidence specular reflectivity: theory, experiment, and applications.  
*Modern Physics Letters B (MPLB)*, 13(9-10):325–335, 1999.
- [74] W. Alayo.  
*Anisotropia Magnética e Acoplamento de Troca em Multicamadas de Metais de Transição*.  
PhD thesis, CBPF - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro Br, 2007.
- [75] B. D. Cullity.  
*Elements of X-ray Diffraction*.

- Addison-Wesley, 1978.
- [76] Simon Foner.  
Versatile and Sensitive Vibrating-Sample Magnetometer.  
*Review of Scientific Instruments*, 30(7):548–557, 1959.
- [77] Quantum Desing Inc.  
Physical Property Measurement System: Vibrating Sample Magnetometer (VSM)  
Option User’s Manual, 2004.
- [78] G. S. Ohm.  
*Die Galvanische Kette*.  
T.H. Riemann, Berlin GE, 1827.
- [79] Howard H. Gerrish, Dugger William E. Jr., and Richard M. Roberts.  
*Electricity And Electronics*.  
Goodheart-Willcox, 2008.
- [80] John H. Scofield.  
AC Method for Measuring Low-Frequency Resistance Fluctuation Spectra.  
*Review of Scientific Instruments*, 58(6):985–993, 1987.
- [81] D. W. F. James and R. G. Jones.  
On the Four-Probe Method of Resistivity Measurement.  
*Journal of Scientific Instruments*, 42(4):283, 1965.
- [82] Quantum Design Inc, Lusk Boulevard San Diego, CA USA.  
*PPMS ETO User’s Manual*, 2009.
- [83] R. J. Needs and M Mansfield.  
Calculations of the surface stress tensor and surface energy of the (111) surfaces of iridium, platinum and gold.  
*Journal of Physics: Condensed Matter*, 1(41):7555, 1989.
- [84] Young Keun Kim, Song-Rae Lee, Jeong-Suk Park, and Gun-Hyung Park.  
Investigation of Magnetoresistive Characteristics of Metallic Multilayers Comprising Ru-Based Synthetic Antiferromagnetic Layers.  
*Journal of the Korean Physical Society*, 43:396–399, 2003.
- [85] A. B. Filho.  
*Propriedades Estruturais, Magnéticas e de Transporte das Multicamadas Co/Cu e Py/X (X = Cu, Zr e WTi) Crescidas por Magnetron Sputtering*.  
PhD thesis, CBPF - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro Br, 2002.
- [86] A. Mello.  
Instrumentação para Produção e Caracterização de Filmes Finos Nanoestruturados.  
Master’s thesis, CBPF - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro, Br, 2002.

- [87] D. W. Face and D. E. Prober.  
Nucleation of body-centered-cubic tantalum films with a thin niobium underlayer.  
*Journal of Vacuum Science & Technology A*, 5(6):3408–3411, 1987.
- [88] Saulius Gražulis, Daniel Chateigner, Robert T. Downs, A. F. T. Yokochi, Miguel Quirós, Luca Lutterotti, Elena Manakova, Justas Butkus, Peter Moeck, and Armel Le Bail.  
Crystallography Open Database (COD): an open-access collection of crystal structures.  
*Journal of Applied Crystallography*, 42(4):726–729, Aug 2009.
- [89] Alla Arakcheeva, Gervais Chapuis, Henrik Birkedal, Phil Pattison, and Vladimir Grinevitch.  
The commensurate composite  $\sigma$ -structure of  $\beta$ -tantalum.  
*Acta Crystallographica Section B*, 59(3):324–336, Jun 2003.
- [90] J. Häglund, A. Fernández Guillermet, G. Grimvall, and M. Körling.  
Theory of bonding in transition-metal carbides and nitrides.  
*Phys. Rev. B*, 48:11685–1691, Oct 1993.
- [91] Saulius Gražulis, Adriana Daškevič, Andrius Merkys, Daniel Chateigner, Luca Lutterotti, Miguel Quirós, Nadezhda R. Serebryanaya, Peter Moeck, Robert T. Downs, and Armel Le Bail.  
Crystallography open database (cod): an open-access collection of crystal structures and platform for world-wide collaboration.  
*Nucleic Acids Research*, 40(D1):D420–D427, 2012.
- [92] R. T. Downs and M. Hall-Wallace.  
The American Mineralogist Crystal Structure Database.  
*American Mineralogist*, 88:247–250, 2003.
- [93] Takashi Yamaoka.  
Antiferromagnetism in  $\gamma$ -phase Mn – Ir alloys.  
*Journal of the Physical Society of Japan*, 36(2):445–450, 1974.
- [94] Kari Brun, A. Kjekshus, and W. B. Pearson.  
Equiatomic Transition Metal Alloys of Manganese. II. The Tetragonal IrMn Phase.  
*Acta Chemica Scandinavica*, 19:107–112, 1965.
- [95] A.D. Dane, A. Veldhuis, D.K.G.de Boer, A.J.G. Leenaers, and L.M.C. Buydens.  
Application of genetic algorithms for characterization of thin layered materials by glancing incidence x-ray reflectometry.  
*Physica B: Condensed Matter*, 253(3-4):254–268, 1998.
- [96] A. Rusanov, R. Boogaard, M. Hesselberth, H. Sellier, and J. Aarts.  
Inhomogeneous superconductivity induced in a weak ferromagnet.  
*Physica C: Superconductivity*, 369(1-4):300–303, 2002.
- [97] Mildred H. Read and D.H. Hensler.  
X-ray analysis of sputtered films of beta-tantalum and body-centered cubic tantalum.  
*Thin Solid Films*, 10(1):123–135, 1972.

- [98] S.L. Lee, M. Doxbeck, J. Mueller, M. Cipollo, and P. Cote.  
Texture, structure and phase transformation in sputter beta tantalum coating.  
*Surface and Coatings Technology*, 177-178:44–51, 2004.  
Proceedings of the 30th International Conference on Metallurgical Coatings and Thin Films.
- [99] Shinji Narishige, Katsuya Mitsuoka, and Y. Sugita.  
Crystal structure and magnetic properties of permalloy films sputtered by mixed ar-n2 gases.  
*Magnetics, IEEE Transactions on*, 28(2):990–993, Mar 1992.
- [100] J.C.A. Huang, T.E. Wang, C.C. Yu, Y.M. Hu, P.B. Lee, and M.S. Yang.  
Epitaxial growth and characterization of (100) and (110) permalloy films.  
*Journal of Crystal Growth*, 171(3-4):442–446, 1997.
- [101] B. Dieny, V.S. Speriosu, B.A. Gurney, S.S.P. Parkin, D.R. Wilhoit, K.P. Roche, S. Metin, D.T. Peterson, and S. Nadimi.  
Spin-valve effect in soft ferromagnetic sandwiches.  
*Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 93(0):101–104, 1991.
- [102] Hua-Rui Liu, Tian-Ling Ren, Bin-Jun Qu, Li-Tian Liu, Wan-Jun Ku, and Wei Li.  
The optimization of Ta buffer layer in magnetron sputtering IrMn top spinvalve.  
*Thin Solid Films*, 441(1-2):111, 2003.
- [103] A. Singh, C. Sürgers, and H. v. Löhneysen.  
Superconducting spin switch with perpendicular magnetic anisotropy.  
*Phys. Rev. B*, 75:024513, Jan 2007.
- [104] B. L. Wu, Y. M. Yang, Z. B. Guo, Y. H. Wu, and J. J. Qiu.  
Suppression of superconductivity in Nb by IrMn in IrMn/Nb bilayers.  
*Applied Physics Letters*, 103(15), 2013.
- [105] Ramis Mustafa Öksüzoğlu, Mustafa Yildirim, Hakan Çinar, Erwin Hildebrandt, and Lambert Aiff.  
Effect of ta buffer and NiFe seed layers on pulsed-dc magnetron sputtered Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> exchange bias.  
*J. M. M. M.*, 323:1827–1834, Jul 2011.
- [106] I. L. Castro, V. P. Nascimento, E. C. Passamani, A. Y. Takeuchi, C. Larica, M. Tafur, and F. Pelegrini.  
The role of the (111) texture on the exchange bias and interlayer coupling effects observed in sputtered NiFe/IrMn/Co trilayers.  
*Journal of Applied Physics*, 113(20), 2013.
- [107] F. Nolting, A. Scholl, J. Stohr, J. W. Seo, J. Fompeyrine, H. Siegwart, J.-P. Locquet, S. Anders, J. Luning, E. E. Fullerton, M. F. Toney, M. R. Scheinfein, and H. A. Padmore.  
Direct observation of the alignment of ferromagnetic spins by antiferromagnetic spins.  
*Nature*, 405:767–769, Jun 2000.

- [108] Hongye Wu, Jing Ni, Jian-wang Cai, Zhao-hua Cheng, and Young Sun.  
Experimental evidence of magnetization modification by superconductivity in a Nb/Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> multilayer.  
*Phys. Rev. B*, 76:024416, Jul 2007.
- [109] D. Stamopoulos and M. Pissas.  
Manipulating superconductivity through the domain structure of a ferromagnet: Experimental aspects and theoretical implications.  
*Phys. Rev. B*, 73:132502, Apr 2006.
- [110] G. Carapella, F. Russo, and G. Costabile.  
Low-field transport measurements in superconducting Co/Nb/Co trilayers.  
*Phys. Rev. B*, 78:104529, Sep 2008.
- [111] R. Steiner and P. Ziemann.  
Magnetic switching of the superconducting transition temperature in layered ferromagnetic/superconducting hybrids: Spin switch versus stray field effects.  
*Phys. Rev. B*, 74:094504, Sep 2006.
- [112] S. V. Dubonos, A. K. Geim, K. S. Novoselov, and I. V. Grigorieva.  
Spontaneous magnetization changes and nonlocal effects in mesoscopic ferromagnet-superconductor structures.  
*Phys. Rev. B*, 65:220513, Jun 2002.
- [113] Y. Cheng and M. B. Stearns.  
Superconductivity of Nb/Cr multilayers.  
*Journal of Applied Physics*, 67(9):5038–5040, 1990.
- [114] D. Khomskii.  
Wohleben Effect (Paramagnetic Meissner Effect) in High-Temperature superconductors.  
*Journal of Low Temperature Physics*, 95(1-2):205–223, 1994.
- [115] C. Bell, R. Loloee, G. Burnell, and M. G. Blamire.  
Characteristics of strong ferromagnetic Josephson junctions with epitaxial barriers.  
*Phys. Rev. B*, 71:180501, May 2005.
- [116] U.D. Chacón Hernández, M.A. Sousa, F.J. Litterst, V.P. Nascimento, and E. Baggio-Saitovitch.  
Effects of Nb buffer layer on superconducting and magnetic behavior of IrMn/NiFe/Nb/NiFe spin-valves.  
*Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 390:114–117, 2015.