

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

Ury Denver Chacón Hernandez

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - CBPF/MCT
Rio de Janeiro, Brasil
2011

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

2011

“As ciências têm raízes amargas, mas muito doces frutas.”

Aristóteles

*A mi familia
y a mis amigos que son como mi otra familia.*

Agradecimentos

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

Estendo meu reconhecimento ao Professor Yutao Xing e ao William Alayo pelas valiosas discussões, pela ajuda e pelas sugestões realizadas no desenvolvimento desta tese. Aos meus colegas Isabel Cristina Souza Dinola e Julian Munevar Cagigas pelo apoio e ajuda na redação da tese. Agradeço ao José Ricardo e à Elisabete Vicente de Souza, aos funcionários da biblioteca e da secretaria da coordenação pela ajuda sempre oportuna. Agradeço aos meus colegas do laboratório de Supercondutividade e de Filmes Finos pelo apóio recebido: Justiniano Quispe-Marcatoma e Jéssica Zaroubin que tornaram agradável o trabalho no laboratório. Agradeço também ao pessoal do Laboratório Nacional de Luz Síncrotron LNLS, pela formação recebida em difração de raios X de alto e baixo ângulo.

Especialmente agradeço à Maggie Torres e à Lyzed Toloza pela boa vontade comigo, pelo apoio incondicional e os gratos momentos.

Agradeço também à minha família, meu pai e meus irmãos, que mesmo de longe deram apoio fundamental e estiveram preocupados comigo em todos os momentos. Aos meus amigos: Adriana Angulo, Andrés Gachancipá, Victor, Bibiana, Diana Carolina, Richard, Andres Perea, Johana, Michel, Guiovanny, Johnny, Javier, Hernan, John Edwin, sinto muita dignidade de ter sua amizade e saber que posso contar com vocês, como vocês podem contar comigo. Aos meus amigos de moradia: David, Santiago, Freddy e Milena, pelo apoio recebido durante este tempo todo. Aos amigos do CBPF, pelos gratos momentos. Agradeço também a todas as pessoas que de uma ou outra maneira contribuíram para a realização deste trabalho.

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

Conteúdo

1	Introdução	1
1.1	Objetivos do Trabalho	5
2	Sistemas Híbridos SC/FM	8
2.1	Supercondutividade	9
2.1.1	Teoria BCS	9
2.1.2	Influência do magnetismo na Supercondutividade . . .	12
2.1.3	Vórtices Magnéticos	16
2.1.4	A Junção Josephson- π nos Sistemas SC/FM/SC	18
2.2	Magnetismo em Filmes Finos	20
2.2.1	Ferromagnetismo	20
2.2.2	Influência da Supercondutividade no Ferromagnetismo	22
2.2.3	Criptoferrromagnetismo	24
2.3	Espessura em Sistemas de Multicamadas SC/FM	25
2.4	Mudança da Ordem Ferromagnética pela Supercondutividade	26
3	Técnicas de Preparação e Caracterização	29
3.1	Magnetron Sputtering	29
3.1.1	Processo de Magnetron Sputtering	30
3.2	Difração de Raios-X	33
3.2.1	Difração em Altos Ângulos	33
3.2.2	Refletividade ou Difração em Baixos Ângulos	34
3.2.3	Difração de Raios-X por Luz Síncrotron	36
3.3	Medidas de Magnetização por PPMS	40
3.3.1	O PPMS (<i>Physical Property Measurement System</i>) . .	40
3.4	Transporte Elétrico	47
3.4.1	Método de Medida da Resistividade Elétrica	47
3.4.2	Método de Medida da Magneto-Resistência	48
3.4.3	Criostato He^4	49

4	Preparação das Multicamadas	51
4.1	Limpeza dos Substratos	51
4.2	Deposição das multicamadas	52
4.2.1	Calibração das Taxas de Deposição	52
4.2.2	Amostras de Multicamadas Preparadas nesta Tese . . .	55
5	Resultados	57
5.1	Análise Estrutural	58
5.2	Propriedades de Transporte	61
5.3	Análise Magnética	64
5.3.1	Sistema Nb/Co	66
5.3.2	Sistema Nb/NiFe	80
6	Conclusões	89

Lista de Figuras

1.1	Esquema ilustrativo da heteroestrutura híbrida-nanopartículas.	2
1.2	Esquema ilustrativo de um sistema híbrido em multicamadas.	3
1.3	Sistema híbrido com nanopartículas incrustadas ordenadamente.	3
1.4	Curvas de histerese do nanocompósito a 8 K e 5 K.	6
2.1	Gap de energia em função da temperatura[1]	11
2.2	Dependência da T_C em função da espessura das camadas FM.	13
2.3	Curvas de magnetização dos supercondutores tipo I, e tipo II.	16
2.4	Diagrama de fases magnéticas.	17
2.5	Magnetização das camadas SC na presença de um campo magnético perpendicular	18
2.6	Corrente crítica I_c em $T = 4.2K$ de junções $Cu_{0,47}Ni_{0,53}$ como uma função da camada FM. (Reproduzido da referência [2]) .	19
2.7	Comportamento da ordem supercondutora próxima da interface.	22
2.8	Magnetização efetiva em função da temperatura para três amostras de Nb/Fe.	23
2.9	Diagrama de fase (λ , α) para diferentes valores de $ \tau = (T_C - T)/T_C$. A área acima (abaixo) das curvas corresponde ao estado FM (criptoferromagnético)[3].	24
2.10	Ilustração das interações dipolo-dipolo entre as camadas SC e FM.	28
3.1	Processo de sputtering utilizando o sistema de magnetron . . .	31
3.2	Esquema do sistema magnetron sputtering do CBPF	32
3.3	Esquema de interferência entre os feixes difratados nas interfaces ar/filme e filme/substrato.	34
3.4	Esquema do Laboratorio de Luz Síncrotron.	37
3.5	Esquema do principio de operação para o PPMS VSM	42
3.6	Módulo padrão de bobinas detectoras e diagrama interno do módulo. . .	43
3.7	Suporte porta-amostras em forma de remo para filmes finos e amostras laminares.	45

3.8	Centralização da amostra com a estação de montagem.	45
3.9	Processo da centragem “touchdown”	46
3.10	Desenho esquemático do método de quatro pontos.	48
3.11	Diagrama esquemático do criostato Oxford.	49
4.1	Espectro de refletividade de raios-X do filme de Co depositado em substrato de Si (111).	54
4.2	Ilustração esquemática dos sistemas híbrido.	56
5.1	Difratograma de raios-X (obtidas por luz síncrotron) dos sistemas das multicamadas Nb/Co _d	58
5.2	Difratogramas de raios-X dos sistemas de multicamadas Nb/NiFe _d , com espessura da camada FM (<i>d</i>) indicada para cada amostra.	59
5.3	Comparação raios-X de baixo ângulo do sistema híbrido (Exp) com um ajuste (Fit) feito por WINGIXA.	60
5.4	Curva de Resistência vs Temperatura das amostras de multicamadas: (a) Nb/Co, e (b)Nb/NiFe.	61
5.5	Medidas de resistência em função da temperatura.	63
5.6	Curva de magnetização do Nb.	64
5.7	Resposta magnética do Co puro	65
5.8	Curvas de magnetização da amostra Nb/Co onde $d = 50 \text{ \AA}$	68
5.9	Detalhe das curvas de magnetização da amostra Nb/Co onde $d = 50 \text{ \AA}$	69
5.10	Curvas de magnetização da amostra Nb/Co onde $d = 100 \text{ \AA}$	70
5.11	Detalhe das curvas de magnetização da amostra Nb/Co onde $d = 100 \text{ \AA}$	71
5.12	Curvas de magnetização da amostra Nb/Co onde $d = 200 \text{ \AA}$	72
5.13	Detalhe das curvas de magnetização da amostra Nb/Co onde $d = 200 \text{ \AA}$	73
5.14	Comparação de três temperaturas da amostra Nb/Co com espessura $d = 50 \text{ \AA}$	74
5.15	Comparação entre temperaturas das amostras Nb/Co com espessuras $d = 100 \text{ \AA}$ e $d = 200 \text{ \AA}$	75
5.16	Diagrama de fase magnética de sistema Nb/Co.	77
5.17	Subtração de funções a temperaturas diferentes do sistema Nb/Co.	79
5.18	Curvas de magnetização da amostra Nb/NiFe $d = 100 \text{ \AA}$	81
5.19	Detalhe das curvas de magnetização da amostra Nb/NiFe $d = 100 \text{ \AA}$	82
5.20	Curvas de magnetização da amostra Nb/NiFe $d = 200 \text{ \AA}$	83

5.21	Detalhe das curvas de magnetização da amostra Nb/NiFe $d =$ 200 Å.	84
5.22	Comparação de três temperaturas das amostras Nb/NiFe. . . .	86
5.23	Subtração de funções a temperaturas diferentes do sistema Nb/NiFe.	88

Lista de Tabelas

2.1	Escalas de comprimento característica do efeito de proximidade SC/FM. Onde são considerados a relação do comprimento de difusão térmica L_T , os limites puros e sujos de cada comprimento [2].	15
4.1	Relação de alvos usados na preparação dos sistemas híbridos	55
4.2	Taxas de deposição dos alvos.	55
4.3	Configurações do sistema híbrido SC/FM	56
5.1	Tabela de espessuras e rugosidades	60
5.2	Relação das espessuras com as temperaturas críticas.	62
5.3	Comparação entre temperaturas críticas, obtidas pelas medidas de transporte e de magnetização.	66
5.4	Comparação entre temperaturas críticas, obtidas pelas medidas de transporte e de magnetização.	80

Resumo

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 π), 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.

Capítulo 1

Introdução

Na natureza, tanto a supercondutividade como o magnetismo são fenômenos mutuamente excludentes. A supercondutividade é a capacidade característica de alguns materiais para conduzir correntes elétricas sem apresentar resistência. Também, o fluxo magnético é expulso do interior do material supercondutor na presença de um campo magnético fraco (diamagnetismo), isso pode ser explicado ao fato do estado supercondutor ser acompanhado pela manifestação de correntes superficiais no material, que cancelam o campo no interior (Efeito Meissner). No entanto, nem todos os supercondutores expulsam o fluxo completamente, e portanto são classificados em dois tipos: os do tipo I, que expulsam completamente o fluxo magnético do interior do material, e os do tipo II, que permitem a entrada de fluxo através de vórtices magnéticos.

Os materiais magnéticos (ferromagnéticos para o caso desta tese) são materiais formados por átomos que contêm momentos magnéticos, os quais são classificados de acordo com a resposta que têm à aplicação de campos magnéticos, onde fluxo magnético penetram no interior do material.

Os materiais ferromagnéticos possuem uma magnetização espontânea devido ao ordenamento dos momentos magnéticos, na mesma direção do campo externo aplicado. Isso quer dizer que, enquanto que os supercondutores expulsam o fluxo magnético do interior, os materiais magnéticos permitem a entrada do fluxo no interior do material.

Pesquisas recentes sobre sistemas, que contêm estes dois tipos de materiais na mesma amostra (sistemas híbridos) mostram uma coexistência entre a supercondutividade e o magnetismo, com propriedades magnéticas pouco usuais [2, 4, 5, 6, 7].

Geralmente, os supercondutores de tipo I (metais ou ligas metálicas), além de ter uma temperatura crítica de transição baixa, não apresentam vórtices magnéticos (como nos supercondutores tipo II) em presença de campo magnético. Mas quando as nanopartículas de material magnético são incrustadas no material supercondutor, é possível a geração espontânea de vórtices magnéticos no interior destas estruturas, em um intervalo de temperaturas abaixo da temperatura crítica, onde são induzidas diferentes fases de vórtices (a fase sólida desordenada ou de vidro, e a fase líquida fixa).

A dependência do estado sólido de vórtice na polaridade do campo magnético mostraria que as partículas ferromagnéticas incrustadas no supercondutor, podem ser usadas para formas específicas de criação e manipulação de vórtices magnéticos [4].

Entre algumas propriedades destes sistemas são observadas também a comutação entre o efeito Meissner diamagnético (efeito usual entre os supercondutores) e o efeito Meissner paramagnético (efeito pouco usual). Neste último ocorre a amplificação da magnetização positiva quando a amostra entra no estado de supercondutor, e a geração de vórtices magnéticos que pode se dar através destas propriedades, mostrando um comportamento magnético diferente[5].

Até agora, existem somente resultados na geração de vórtices magnéticos, usando nanopartículas ferromagnéticas incrustadas aleatoriamente no interior do material supercondutor, partindo de técnicas de produção onde não é possível o ordenamento das partículas no interior do material (figura 1.1).

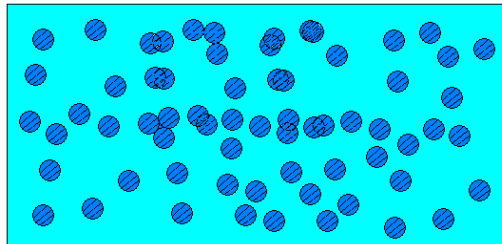


Figura 1.1: Esquema ilustrativo da heteroestrutura híbrida com nanopartículas ferromagnéticas (esferas) incrustadas no material supercondutor.

O que aconteceria com a geração de vórtices magnéticos se as partículas ferromagnéticas estivessem incrustadas no supercondutor de forma ordenada? Que propriedades, e como poderia ser construído um sistema assim? Obter um sistema com nanopartículas ordenadamente incrustadas em um supercondutor é difícil, pois são poucas as técnicas que conseguem distribuir de forma controlada as nanopartículas. Um sistema híbrido ordenado pode ser obtido de uma estrutura de multicamadas. Este sistema é composto por

camadas supercondutoras com certa espessura, separadas por camadas ferromagnéticas (figura 1.2), as quais geralmente tem uma espessura menor do que as camadas supercondutoras.

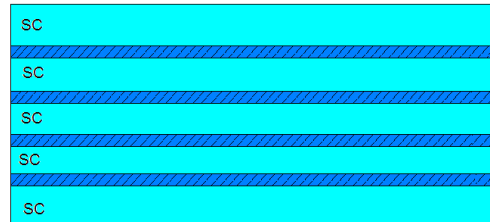


Figura 1.2: Esquema ilustrativo de um sistema híbrido supercondutor (franjas azuis SC) /ferromagnético (franjas com linhas) em multicamadas.

As técnicas atuais de criação de sistemas híbridos em multicamadas são, em certa forma, mais acessíveis que as técnicas de criação de nanopartículas, e garantem uma distribuição homogênea de material sobre uma área determinada, oferecendo a possibilidade de alternar materiais distintos em cada camada. Partindo deste tipo de sistemas, e através de processos de tratamento térmico de aquecimento, as camadas ferromagnéticas podem gerar partículas de dimensões nanométricas por efeitos de nucleação (figura 1.3). Este processo garante um nível de ordenamento transversal no sistema híbrido, o qual pode ser de grande ajuda para estudar sistemas com partículas ordenadamente incrustadas.

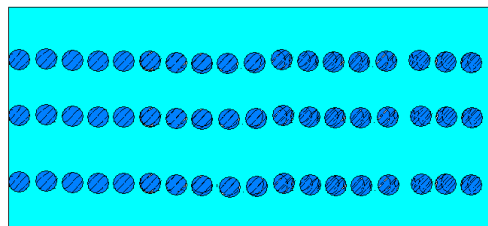


Figura 1.3: Sistema híbrido com nanopartículas ferromagnéticas incrustadas ordenadamente em camadas no material supercondutor

O contato de materiais com diferentes intervalos de ordenamento magnético (neste caso, materiais ferromagnéticos com supercondutores) modifica as propriedades no entorno da interface. No caso da interface entre um supercondutor e um metal normal, os pares de Cooper podem penetrar certa distância no metal.

Se o movimento dos elétrons é difuso, esta distância é proporcional à escala do comprimento de difusão térmico $L_T \sim \sqrt{D/T}$ onde D é a constante de difusão e T é a temperatura. No caso de um metal puro, a distância característica ou comprimento de correlação ξ_T está dado por: $\xi_T \sim \nu_F/T$, onde ν_F é a velocidade de Fermi no metal.

As propriedades supercondutoras podem ser induzidas no metal, este fenômeno é conhecido como *efeito de proximidade*. Simultaneamente o “vazamento” dos pares de Cooper enfraquece a supercondutividade perto da interface como o metal (*efeito de proximidade inverso*). Isto resulta em uma diminuição na temperatura crítica de transição supercondutora (T_c) da camada supercondutora em contato com o metal [2].

O propósito inicial desta tese é estudar as características magnéticas de sistemas híbridos Supercondutor/Ferromagneto (SC/FM) em multicamadas, com camadas ferromagnéticas de espessuras próximas às dimensões de nanopartículas. Assim, podemos comparar estas propriedades com os sistemas híbridos de nanopartículas incrustadas em materiais supercondutores.

1.1 Objetivos do Trabalho

Materiais compósitos com estruturas em escala nanométrica, denominadas nano-combinações, são um campo atual de pesquisa em física do estado sólido. Um exemplo de tais nano-combinações são sistemas feitos de materiais supercondutores (SC) e ferromagnéticos (FM). Esta pesquisa é interessante para estudo teórico mas também para aplicações. Nestes sistemas, a interação entre os fenômenos de cooperação exclusiva, SC e FM, pode ser estudada e nos dá a oportunidade de observar alguns fenômenos novos como supercondutividade de domínio-parede [8], efeito de histerese fixa [9] etc. A maioria de tais combinações de SC/FM são de sistemas de multicamadas [10, 11] ou filmes de SC com pontos FM (partículas) na superfície [12, 13]. No CBPF, outro tipo de nano-compósito, filmes de Pb com partículas nanométricas de Co embutidas, é preparado e a interação entre o SC e FM está sendo estudada com bastante interesse.

A influência das nanopartículas de Co na temperatura crítica de transição supercondutora (T_C) da matriz de Pb, o estado de vórtice dentro da amostra como função da temperatura, e com campos externos aplicados, estão sendo estudados. As nanopartículas ferromagnéticas embutidas em uma matriz supercondutora reduzem T_C devido (i) ao efeito de proximidade [2], e (ii) à formação de vórtices espontâneos ao redor dos agrupamentos de nanopartículas FM. As partículas de Co nas superfícies SC possuem domínio único e a direção de sua magnetização é completamente aleatória. Estas nanopartículas estão cercadas de supercorrentes abaixo da T_C da matriz, pois todas as nanopartículas têm momentos magnéticos abaixo da temperatura de bloqueio. As supercorrentes constroem uma rede aleatória de vórtices dentro do compósito SC/FM, sendo estes chamados vórtices espontâneos. Embora este estado de vórtice tenha sido previsto há 40 anos atrás [14], eles não são facilmente observáveis, porque normalmente é necessário um campo magnético interno no supercondutor para observar a fase de vórtice espontâneo.

Como sabemos, supercondutividade e magnetismo são dois fenômenos conflitantes, na maioria dos casos eles não podem coexistir na natureza. No estudo preliminar com nanopartículas embutidas em uma matriz supercondutora, mostrou claras evidências de um estado de vórtice espontâneo em nanocompósitos SC/FM[5].

As nanopartículas magnéticas de Co na amostra podem induzir vórtices espontâneos, e a orientação deles depende da orientação dos momentos dos nanoclusteres. Isto pode ser devido a uma orientação diferente com o campo magnético externo, de modo que, o comportamento magnético das amostras é diferente de um supercondutor normal (efeito Meissner diamagnético,

EMD), pois observamos o efeito Meissner paramagnético (EMP)[5].

Os resultados mostram claramente que nos nanocompósitos de Pb/Co podem alternar EMP e EMD, mesmo em experimentos ZFC os quais, pelo nosso conhecimento, não foram relatados antes. Estes resultados são dados pela troca da orientação dos momentos magnéticos das nanopartículas de Co relativa ao campo magnético externo. Foram encontradas evidências para a formação de vórtices espontâneos, induzidos pelas nanopartículas de Co, sendo esta causa do EMP observado. Esses vórtices são intrinsecamente diferentes daqueles criados pelos magnetos situados fora do supercondutor. Devido à esses vórtices espontâneos, o nanocompósito SC/FM possui um novo comportamento magnético, que não foi observado antes. Além do mais, os vórtices espontâneos têm um comportamento anômalo próximo ao valor de H_{C2} como mostra a figura 1.4 [5].

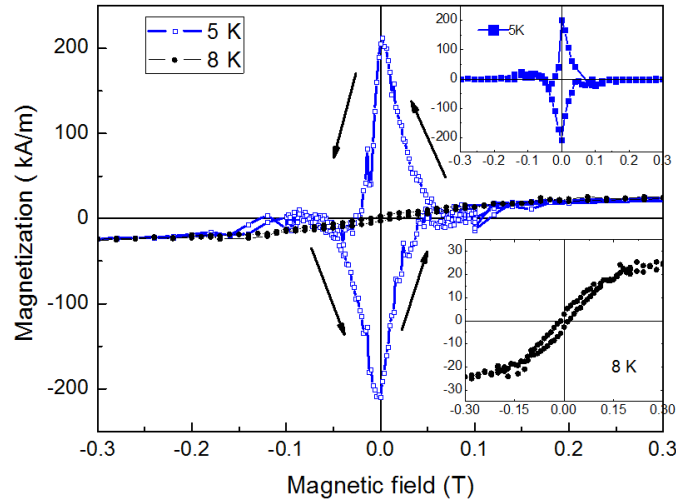


Figura 1.4: Curvas de histerese do nanocompósito a 8 K e 5 K, os quais estão acima e abaixo da T_C respectivamente. A inserção superior mostra o ciclo de histerese de 5 K com o sinal ferromagnético subtraído, ou seja, somente a resposta supercondutora. A inserção inferior mostra a parte central da curva em 8 K.

A figura 1.4 mostra as curvas de histerese para a amostra em 5 K e 8 K e podemos ver que a amostra é ferromagnética a 8 K conforme o esperado. a histerese, no entanto, mostra a coexistência de SC e FM abaixo de H_{C2} que é de 0,15 T para esta amostra. As discussões detalhadas podem ser encontradas nos trabalhos anteriores[5]. Os autores usam Pb como matriz supercondutora, que é facilmente depositável por alta pressão de vapor e T_C suficientemente alta (7.1 K) mas devido fácil oxidação do Pb as medidas de transporte são realizadas in-situ. Para os nanocompósitos de Pb/Co, a T_C e T_G estão acima de 2 K.

Novamente pela fácil oxidação do Pb, é quase impossível remover a amostra para fazer outras medidas, como medidas de magnetização. Neste caso, um outro tipo de matriz de supercondutora, não tão facilmente oxidável, é necessária para estudos adicionais dos estados de vórtice. O nióbio e estanho podem ser bons candidatos. No entanto, o ponto de fusão do nióbio é muito alto para depositar com evaporação térmica, assim se faz necessário o uso de outra técnica, a deposição com sputtering. As propriedades magnéticas podem ser medidas com SQUID ou PPMS, fornecendo mais informações sobre a interação das nanopartículas magnéticas com a matriz supercondutora. No trabalho[5], os autores não discutiram sobre o comportamento anormal na inserção superior na figura 1.4, quando o campo magnético externo está próximo de H_{C2} .

Nesta tese, estudamos isto detalhadamente com várias amostras, onde preparamos multicamadas de Nb/Co e Nb/NiFe. Como as propriedades magnéticas diferem nos sistemas híbridos, o objetivo inicial é estudar as características magnéticas de sistemas híbridos Supercondutor/Ferromagneto (SC/FM) em multicamadas, com camadas ferromagnéticas de espessuras próximas às dimensões de nanopartículas e com campo magnético externo. Assim, podemos comparar estas propriedades com os sistemas híbridos de nanopartículas incrustadas em materiais supercondutores.

Capítulo 2

Sistemas Híbridos Supercondutor/Ferromagnético (*SC/FM*)

Quando se fala em supercondutividade e magnetismo em um material; geralmente está se falando de dois fenômenos cuja coexistência é excludente.

Geralmente o campo de troca, no estado magnético, tende a ordenar os spins do par de Cooper na mesma direção, provocando o efeito de quebra de pares. Anderson e Suhl (1959) demonstraram que é improvável que ocorra o ordenamento ferromagnético na fase supercondutora. A principal razão disso é a supressão da componente do vetor de onda zero da suscetibilidade paramagnética eletrônica na presença da supercondutividade. Nesta situação, a energia para o ordenamento ferromagnético diminui, e em lugar da ordem ferromagnética, um ordenamento magnético não uniforme deve aparecer. Anderson e Suhl chamaram esse comportamento *criptoferromagnetismo*[2].

Ainda assim, a coexistência da supercondutividade (SC) e o ferromagnetismo (FM) é pouco provável em estruturas granulares, mas pode ser obtido nos sistemas de multicamadas, devido ao efeito de proximidade. Com os últimos avanços das técnicas de produção de heteroestruturas nanofabricadas e multicamadas, a interação SC/FM tem um interesse maior, mostrando uma grande quantidade de possibilidades na combinação de ambos tipos de material [6].

Apesar das propriedades básicas dos sistemas SC/FM tenham sido muito estudadas, os efeitos de proximidade estão longe de ser entendidos qualitativamente. A temperatura crítica de transição T_c de uma amostra SC/FM pode ser diminuída devido à penetração dos pares de Cooper na camada FM [2, 6].

Considerando o caso mais relevante, quando a temperatura de Curie (Θ) é

maior que o T_c do supercondutor, a densidade de decaimento exponencial dos pares de Cooper na camada ferromagnética tem um caráter oscilatório. Isso leva a um campo de troca dependente tanto da corrente crítica nas camadas SC/FM/SC, como da T_c nas bicamadas SC/FM. A presença do espalhamento spin-órbita (nos pares de Cooper) não somente mudam os comprimentos de oscilação, mas também leva a um decaimento extra do parâmetro de ordem. Onde pode-se ver que as oscilações da T_c em função da espessura das camadas ferromagnéticas são afetadas pela presença do espalhamento spin-órbita [6].

Em tal caso, é possível estudar as propriedades dos elétrons supercondutores sob a influência de um campo de troca grande. É possível também estudar a interação entre a supercondutividade e o magnetismo de uma forma controlada, pois uma variação da espessura das camadas pode mudar a força relativa das interações concorrentes[6].

2.1 Supercondutividade

A supercondutividade foi descoberta por Kamerling Onnes (1911), que realizou pesquisas relacionadas com a dependência da resistência elétrica com a temperatura, e descobriu que a resistência elétrica do mercúrio (Hg) desaparecia abaixo de certa temperatura, que foi chamada Temperatura Crítica de transição T_c . Posteriormente, o mesmo fenômeno foi observado em outros elementos químicos, entre eles o nióbio (Nb) com um $T_C = 9K$. Em 1933 foi identificada sua segunda propriedade que caracterizou a supercondutividade como um estado novo da matéria, denominado *Efeito Meissner-Ochsenfeld*. Esse efeito consiste na expulsão do fluxo magnético do interior do material supercondutor na presença de um campo magnético externo [15].

Este novo estado foi explicado pela teoria desenvolvida em 1957 por Bardeen, Cooper e Sherieffer, ou teoria BCS, onde se postula que a supercondutividade é carregada por partículas chamadas *Pares de Cooper*. O fato de que a supercondutividade é carregada pelos pares de Cooper, pode ser entendido como dois elétrons com seus spins antiparalelos, onde o momento total do par é zero.

2.1.1 Teoria BCS

Em 1957, Bardeen, Cooper e Schrieffer propuseram uma teoria microscópica para explicar o comportamento dos supercondutores. Onde os dois fatores fundamentais da teoria BSC são:

- (i) A formação dos pares de Cooper.

- (ii) A existência de um gap de energia entre o estado normal e o estado supercondutor.

O estado fundamental de um gás de elétrons sem interação a $T = 0K$ é representado pela esfera de Fermi. Os elétrons preenchem todos os estados até um valor máximo \mathbf{k}_F , e acima deste valor os estados permanecem vazios. Em uma rede cristalina, os elétrons interagem com os íons da rede criando uma deformação local no ordenamento periódico da rede. A medida que o elétron se propaga pelo cristal a deformação o acompanha. Esta interação gera um aumento de local da densidade de carga positiva que atrai outro elétron. portanto é os dois elétrons são atraídos entre eles. Os efeitos das interações coulombianas entre os elétrons e o campo dos fônons permitem uma interação entre os elétrons formando o par de Cooper [16].

A teoria BCS mostra que pares de Cooper são formados com maior probabilidade entre elétrons em estados com vetores de onda e spins opostos. Os pares devem-se escolher onde a transição entre eles seja possível, ou seja que todos eles tenham o mesmo momento total[16].

Devido a o fato de a velocidade do elétron ser muito maior do que a do fônon, haverá um retardamento na propagação da deformação em relação ao elétron. Isso faz com que elétrons que formam um par de Cooper permaneçam correlacionados por longas distancias. A dimensão do par pode ser estimada simplesmente multiplicando-se a velocidade de Fermi, $\nu_F \approx 10^7 m/s$ pela frequência de Debye, $\omega_D \approx 10^{-13} s^{-1}$

$$\nu_F \times 2\pi/\omega_D \approx 1000\text{Å}$$

Esta dimensão é muito maior do que o alcance da interação repulsiva coulombiana blindada, que portanto tem pouco efeito sobre a formação do par[15].

Os pares de Cooper são formados com maior probabilidade entre elétrons em estados com vetores de onda e spin opostos, representando um estado do par dado por:

$$(k \uparrow, -k \downarrow)$$

Como a função de onda possui a forma de um pacote de ondas que descrevem o movimento de uma partícula livre, neste caso é como se os pares de Cooper formassem um gás de partículas livres dentro do supercondutor. portanto a função de onda do par pode ser escrita sob a forma geral:

$$\psi(r_1 - r_2) = \frac{1}{L^3} \sum_k g(k) e^{i[k \cdot (r_1 - r_2)]} \quad (2.1)$$

Sendo $|g(k)|^2$ a probabilidade de o par ser encontrado no estado $(k \uparrow, -k \downarrow)$.

Dado que no estado fundamental de um supercondutor todos os pares de Cooper ocupam o mesmo estado de energia. O resultado mais importante desta teoria é a previsão de que o primeiro estado excitado acima do estado fundamental se encontra a uma distância (em energia), representado por 2Δ , e corresponde ao estado de elétrons independentes. Em outras palavras, entre o estado supercondutor e o estado normal existe um gap de energia. Esse gap é o responsável pelas características pouco comuns dos supercondutores, como a supercorrente e o efeito Meissner[1].

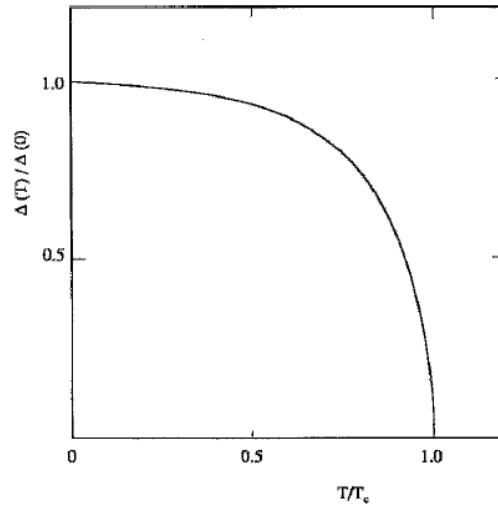


Figura 2.1: Gap de energia em função da temperatura[1]

Para um valor aproximado de Δ em um valor mínimo de temperatura ($T = 0$), calculado pela teoria BSC é

$$\Delta(0) \approx 2\hbar\omega_D e^{-1/N_0 V_0} \quad (2.2)$$

Onde N_0 é a densidade de níveis eletrônicos para a nuvem de elétrons no metal, e V_0 é o potencial efetivo atrativo ou parâmetro de interação entre dois elétrons com vetores de onda \mathbf{k}_1 e \mathbf{k}_2 . Além disso, através desta teoria podemos fazer o cálculo da temperatura crítica T_C para o campo magnético externo zero[15, 1].

$$k_B T_C = 1,14 \hbar\omega_D e^{-1/N_0 V_0} \quad (2.3)$$

A dependência entre o gap de energia e a temperatura crítica é dada por:

$$\frac{\Delta(0)}{k_B T_C} = 1,76 \quad (2.4)$$

Este valor aparece em um grande numero de materiais supercondutores. Comparando com a temperatura de Debye, a magnitude de T_C é menor, isso pode ser devido á cancelamento da interação dos fônos e a interação blindada dos elétrons que conformam os pares de Cooper no estado supercondutor[1].

2.1.2 Influência do magnetismo na Supercondutividade

Para sistemas híbridos de multicamadas SC/FM, os valores de T_c mostram uma oscilação amortecida em função da espessura do material FM, pois T_c diminui quando a espessura da camada FM aumenta (figuras 2.2(a,b)). Muitos resultados experimentais mostram as peculiaridades de T_C com a espessura da camada ferromagnética d_{FM} em sistemas SC/FM, como por exemplo Nb/Gd. Este pode ser explicado supondo que entre duas camadas SC, separadas por uma camada FM, ocorre um acoplamento do tipo Josephson- π . É conhecido que a amplitude da função da onda do par de Cooper decresce exponencialmente na camada FM, como em um metal não magnético normal. Além disso, devido ao caráter de propagação da função de onda supercondutora através da camada FM, a fase da função de emparelhamento supercondutor oscilaria no espaço. Assim, em certa espessura, a função de emparelhamento supercondutor teria fases opostas de ambos lados da camada FM[17].

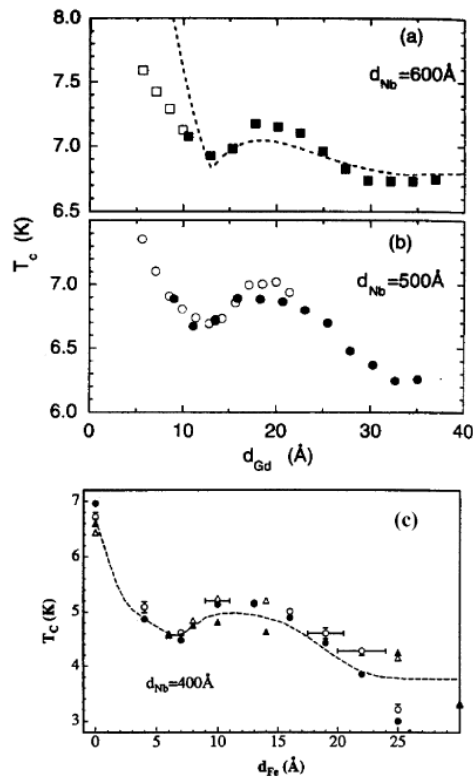


Figura 2.2: Dependência da T_C em função da espessura das camadas FM, **(a, b)** para dois sistemas de multicamadas Nb/Gd com espessuras diferentes na camada de Nb, e **(c)** um sistema de tricamada Fe/Nb/Fe com a camada de Nb com espessura menor, preparados pela técnica de Sputtering[17].

Uma possível descrição deste comportamento pode ser o fato de T_C não depender da camada de material FM, mas do método de preparação (MBE¹ ou Magnetron Sputtering). Por exemplo, muitos experimentos realizados com MBE mostram que T_c não muda propriamente com a espessura da camada FM, pois em espessuras menores a $d = 20\text{Å}$ ocorre um crescimento irregular das camadas FM (crescimento em ilhas).

Nos nossos sistemas de multicamadas com espessura acima de 50Å o crescimento das camadas é mais homogêneo, e a espessura é próxima ao diâmetro de nanopartículas (entre 50Å e 200Å). Deste modo mostraremos a existência de uma dependência de T_C com a espessura da camada FM nos nossos resultados.

Em sistemas de tricamadas FM/SC/FM (figura 2.2(c)) ocorre uma dependência não monótona da T_C com a espessura das camadas FM (d_{FM}). Considerando que a espessura da camada SC é fixa, esta dependência é similar à observada em sistemas de multicamadas. De acordo com Mühge *et al.*[18], a interpretação desta dependência peculiar de $T_C(d_{FM})$, pode ser entendida pela presença de uma intercamada não magnética (“magneticamente morta”) entre a interface SC/FM. Esta intercamada atua de duas maneiras. Por um lado, T_C é reduzida devido à introdução de uma interação fortemente repulsiva pelos pares de Cooper. Por outro lado, esta intercamada protege as camadas SC de uma forte quebra de pares pelo campo de troca das camadas FM. Essas camadas são formadas pela interdifusão entre os átomos da camada SC com a camada FM através da interface.

Dois características importantes devem ser consideradas para se determinar a dependência de T_C em função da espessura das camadas ferromagnéticas (d_{FM}):

1. Os valores da T_C para amostras com camadas FM é significativamente reduzida comparada com uma amostra de Nb puro.
2. Seguindo a rápida queda inicial, existe uma oscilação da T_C com o aumento da espessura das camadas FM.

A redução inicial da T_C pode ser atribuída principalmente à quebra dos pares supercondutores, influenciada pelas camadas FM, devido ao efeito de proximidade entre as camadas SC. Os elétrons supercondutores são espalhados dentro das camadas FM e são submetidos ao campo de troca. Portanto, esta polarização parcial do spin dos elétrons inibem a formação dos pares de cooper.

Nos sistemas SC/FM podemos considerar dois tipos de limites que descrevem o comportamento dos pares de Cooper na interface. Estes limites são

¹Molecular Beam Epitaxial

chamados: limite puro (*pure limit*) que está relacionado com as velocidades de Fermi nas regiões supercondutora e ferromagnética (ν_S e ν_F) respectivamente. E o limite sujo (*dirty limit*) onde considera-se o coeficiente de difusão $D = \frac{1}{3}\nu_F l$, sendo l o caminho livre medio. Com estes limites podemos calcular as seguintes escalas de comprimento características do efeito de proximidade SC/FM [2].

Comprimentos	Relação	Limite puro	Limite sujo
Difusão térmica L_T	$\sqrt{\frac{D}{2\pi T}}$		
Coerência supercondutor ξ_S		$\frac{\nu_S}{2\pi T_C}$	$\sqrt{\frac{D_S}{2\pi T_C}}$
Decaimento da correlação SC no ferromagneto ξ_{1F}		$\frac{\nu_S}{2\pi T}$	$\sqrt{\frac{D_F}{h}}$
Correlação oscilatoria SC no ferromagneto ξ_{2F}		$\frac{\nu_F}{2h}$	$\sqrt{\frac{D_F}{h}}$

Tabela 2.1: Escalas de comprimento característica do efeito de proximidade SC/FM. Onde são considerados a relação do comprimento de difusão térmica L_T , os limites puros e sujos de cada comprimento [2].

De acordo com Radović *et al*[19]. A rápida queda de T_C é retardada quando a d_{FM} é da ordem do comprimento de penetração característico dos pares de Cooper dentro das camadas FM. Para um limite sujo (*dirty-limit*) em multicamadas SC/FM, no modelo sugerido por Radović *et al.*[19], a oscilação da T_C é resultado da mudança do acoplamento entres as camadas supercondutoras. A diferença de fase entre camadas SC, $\Delta\phi = \pi$, pode dar um aumento de T_C para certos intervalos de espessura, como o estado fundamental muda rapidamente de $\Delta\phi = 0$ a $\Delta\phi = \pi$ com o aumento da espessura da camada FM, surge uma oscilação em T_C . Isso é resultado da dependência não monótona de T_C com a espessura da camada ferromagnética d_{FM} , caracterizada por um aumento acentuado de T_C , tal como a fase π quando torna-se energeticamente favorável [20].

Portanto, a oscilação da T_C em função da espessura da camada FM em sistemas de multicamadas SC/FM ocorre devido a diferentes razões físicas, tal como o acoplamento Josephson- π através da camada FM, ou a existência de uma camada não magnética (“magneticamente morta”) na interface SC/FM. Estas idéias podem ser empregadas de igual maneira para estudar sistemas híbridos de muticamadas com espessuras d_{FM} próximas ao diâmetro de nanopartículas magnéticas (entre 50 Å e 200 Å).

2.1.3 Vórtices Magnéticos

Considerando um supercondutor na presença de um campo magnético externo B , certa quantidade de energia é usada na geração de correntes superficiais que cancelam o campo H no interior do material. Se o campo é suficientemente grande, é energeticamente mais vantajoso para o material voltar ao estado normal, permitindo assim, que o campo penetre no mesmo[15]. Em certos casos, o estado supercondutor simplesmente é suprimido quando H ultrapassa certo valor crítico (H_C). Os supercondutores que apresentam este comportamento são classificados como tipo I. Nos supercondutores de tipo II, existem dois valores de campo crítico H_{C1} e H_{C2} . Abaixo de H_{C1} não há penetração de campo no interior do supercondutor (efeito Meissner), para valores de campo maiores a H_{C2} o material volta ao estado normal, permitindo a penetração do campo. Contudo, quando o campo está entre os dois valores de campo críticos ($H_{C1} < H < H_{C2}$), a penetração do campo no interior do supercondutor é parcial, ocorrendo através de estruturas magnéticas com forma de tubos ou canais conhecidas como vórtices magnéticos [15].

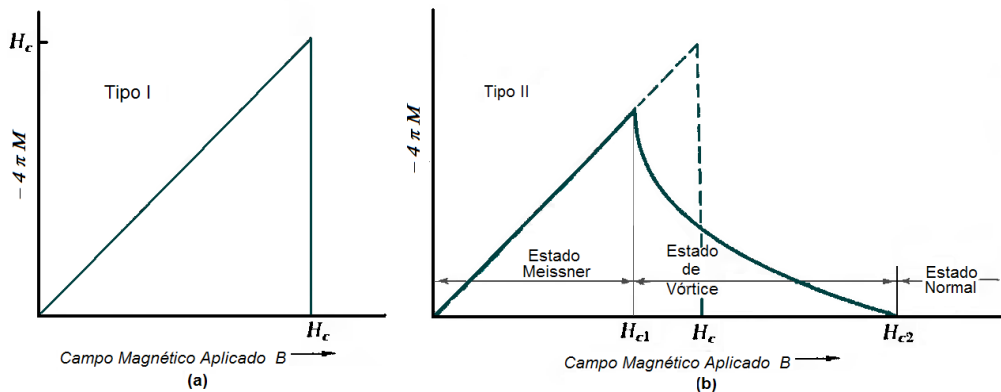


Figura 2.3: Curvas de magnetização dos supercondutores: (a) tipo I, e (b) tipo II. Onde são indicadas as regiões limitadas pelos valores de campo magnético H_{C1} e H_{C2} .

Como é apresentado nos gráficos da figura 2.3(b), a curva de magnetização mostra as regiões dos diferentes estados supercondutor tipo II. A primeira região localizada antes de H_{C1} é o estado supercondutor puro, onde não há entrada do campo magnético. A região que fica no intervalo $H_{C1} < H < H_{C2}$ é chamada estado de vórtice, nesta região há penetração parcial de campo através dos vórtices magnéticos presentes neste estado.

A região acima de H_{C2} é o estado normal do material. O estado de vórtice pode ser dividido por diferentes configurações, as quais dependem

do comportamento que estes podem manifestar com respeito aos valores de campo magnético em certa temperatura. Estas configurações são chamadas fases magnéticas, e são obtidas a partir de medidas de magnetização ou de resistência[5]; estas fases podem ser analisadas usando um diagrama de fases magnéticas (figura 2.4).

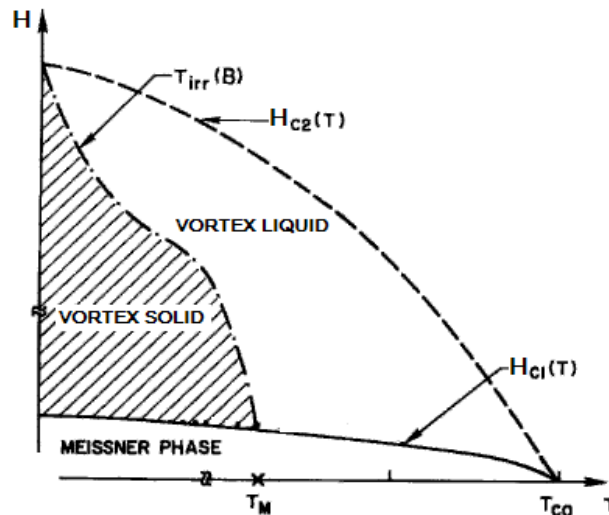


Figura 2.4: Diagrama de fases magnéticas, onde é mostrada a fase Meissner (MEISSNER PHASE), a fase sólida de vórtices (VORTEX SOLID), e a região da fase líquida dos vórtices (VORTEX LIQUID).

Na figura 2.4 são mostradas as diferentes fases magnéticas dos supercondutores tipo II, baseados em uma fase Meissner de diamagnetismo perfeito (ausência de vórtices) nas temperaturas mais baixas, e duas fases de vórtices em temperaturas maiores. A primeira fase é a fase sólida (*Vortex Solid*). Onde os vórtices são suficientemente numerosos, de modo que sua carga e densidades de corrente se sobrepõem significativamente, formando uma fase condensada a temperaturas relativamente baixas. Os vórtices ficam presos em configurações ordenadas, como uma rede cristalina, onde eles não podem deslocar-se pelo material. Para temperaturas relativamente maiores no estado supercondutor (abaixo de T_C), a energia dos vórtices é maior que na fase sólida, também há uma menor quantidade de vórtices no supercondutor, portanto ficam mais livres para deslocar-se por todo o material. Esta fase é chamada fase líquida (*Vortex liquid*).

Além de ser modificadas pela temperatura, as fases de vórtices também dependem da intensidade de campo magnético, que altera a configuração dos

vórtices dependendo do material ou da estrutura supercondutora usada[21].

Geralmente as propriedades dos vórtices magnéticos são estudadas em supercondutores de alta temperatura crítica (*HTSC*). Pesquisas em sistemas híbridos de multicamadas SC/FM mostram comportamentos anômalos nas propriedades dos vórtices (figura 2.5).

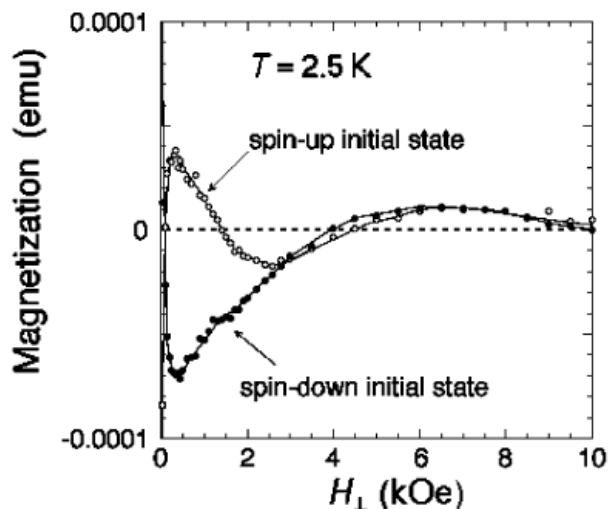


Figura 2.5: Magnetização das camadas SC em $T = 2.5$ K na presença de um campo magnético perpendicular[22].

Quando é aplicado um campo magnético perpendicular à amostra (abaixo de T_C), a magnetização muda abruptamente de sinal, mostrando um comportamento oscilatório, onde os momentos magnéticos das camadas FM influenciam fortemente nas propriedades dos vórtices magnéticos[22].

2.1.4 A Junção Josephson- π nos Sistemas SC/FM/SC

Uma junção Josephson no equilíbrio normalmente tem uma diferença de fase zero entre dois supercondutores, embora possa acontecer uma transição à fase π em sistemas de multicamadas SC/FM. Isso quer dizer que para uma junção Josephson SC/FM/SC a diferença de fase de equilíbrio pode ser π , portanto é natural que seja chamada junção- π . Para este tipo de junções, a transição do estado zero ao estado π resulta em uma mudança de sinal na corrente crítica I_c .

A espessura característica das camadas FM correspondentes à transição da fase zero a π é $\epsilon_f = \sqrt{D_f/\hbar}$, isso é bastante pequeno ($10 - 50\text{\AA}$) em ferromagnetos típicos por causa do grande campo de troca ($h \gtrsim 1000K$).

Partindo das condições das camadas FM, a corrente crítica I_c pode ter dependência da temperatura, e mostra fortes variações de intensidade dependendo da espessura da camada FM, isso geralmente acontece com as ligas metálicas ferromagnéticas. Esta dependência forte da espessura pode ser explicada pelo efeito de espalhamento magnético, o qual é inerente das ligas ferromagnéticas. O espalhamento magnético fortalece a diminuição da corrente com um aumento da espessura da camada FM, ao mesmo tempo que aumenta o período de oscilação da corrente crítica $I_c(2d_f)$ [2].

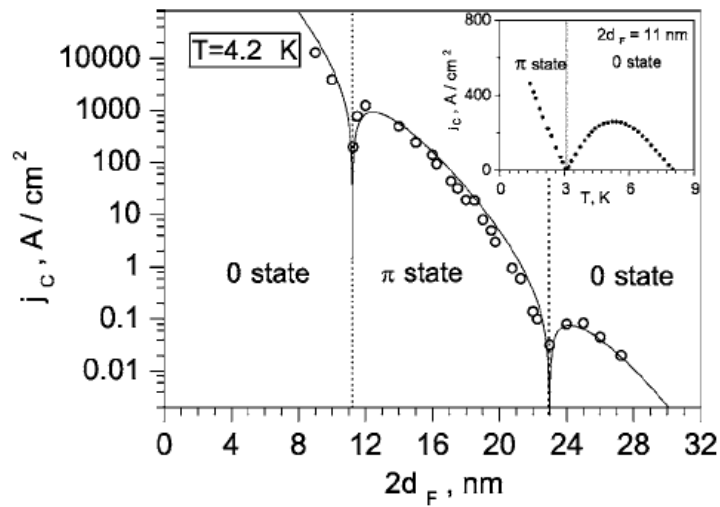


Figura 2.6: Corrente crítica I_c em $T = 4.2\text{K}$ de junções $\text{Cu}_{0,47}\text{Ni}_{0,53}$ como uma função da camada FM. (Reproduzido da referência [2])

2.2 Magnetismo em Filmes Finos

O magnetismo é um fenômeno de interação entre os momentos magnéticos (ou os spins dos elétrons), fraco em comparação aos efeitos eletrostáticos, e sutil em suas manifestações. É explicado com maior detalhe pela mecânica quântica, tendo sua origem na existência do spin do elétron e no princípio de exclusão de Pauli, mostrando uma grande variedade de forças de curto e longo alcance.

Os filmes magnéticos são os sistemas nanoestruturados mais estudados na atualidade. O interesse nestes sistemas nas últimas décadas surgiu devido às consideráveis mudanças em suas propriedades fundamentais (sejam elétrica, ópticas, mecânicas ou magnéticas).

O estudo das propriedades magnéticas nos filmes finos fez possível o desenvolvimento de novos dispositivos de memória (discos rígidos de maior capacidade e menor tamanho). Os fenômenos magnéticos originados pelo comportamento magnético próximo às superfícies (ou interfaces, ou a poucos planos atômicos abaixo dela) de um sólido magneticamente ordenado, diferem em muitos aspectos de seu interior. Este fato é decorrente da redução da simetria, redução do número de coordenação e sensibilidade dos estados eletrônicos que constituem o magnetismo de superfícies.

2.2.1 Ferromagnetismo

O termo ferromagnetismo (FM) é relacionado com o comportamento magnético intenso, devido à presença de uma magnetização espontânea produzida por um alinhamento paralelo dos spins. Geralmente, o ordenamento magnético de um material com certa magnetização espontânea é claramente mostrado por um campo magnético macroscópico. Da totalidade dos elementos puros que existem, o ferromagnetismo só ocorre em três metais de transição $3d$, o ferro (Fe), o cobalto (Co) e o níquel (Ni), também existe este tipo de efeito em ligas metálicas como o permalloy (Ni-Fe) [15], e nas terras Raras $4f$. As propriedades destes materiais são:

- a. Abaixo da temperatura de Curie, Θ , eles possuem uma magnetização espontânea $M_S(T)$. Esta é resultado de uma complexa interação de troca explicada pela mecânica quântica (interação de Heisenberg), na qual a energia é mínima quando os momentos magnéticos estão paralelos.
- b. A intensidade da magnetização espontânea $M_S(T)$ depende da temperatura, e tem o valor máximo em 0 K, diminuindo com aumento da temperatura, e é zero acima da temperatura de Curie Θ .

- c. Se os materiais são aquecidos acima da temperatura de Curie, a magnetização espontânea desaparece, e o material torna-se paramagnético
- d. Os materiais ferromagnéticos podem apresentar, mesmo com magnetização espontânea, ausência de magnetização macroscópica aparente.

No modelo proposto por Weiss (1907), em um material ferromagnético (FM) parte dos momentos magnéticos estão acoplados por um campo macroscópico (campo molecular). Este modelo relaciona a natureza dos momentos magnéticos em materiais FM, o qual leva a dois pontos de vista: Um deles é associado com o modelo de Heisenberg (momentos magnéticos localizados), onde são incluídos os modelos de spin clássico (Heisenberg $3D$, Ising $2D$ ou modelo XY com anisotropia axial e planar), relacionados com transições de fase magnéticas. O outro ponto de vista é associado com o modelo de Stoner (magnetismo itinerante ou teoria de bandas), o qual, pela teoria de bandas com polarização de spin, considerando a aproximação de spin local, descreve o estado fundamental magnético do sistema $3D$ ou $2D^2$.

O comportamento magnético próximo a uma superfície (ou interface) em um material magneticamente ordenado pode diferir muito em relação ao seu interior. Os átomos próximos à superfície de um material mostram constantes de rede diferentes na direção da superfície (geralmente menor). Além disso, existem também evidências de que os momentos atômicos próximos à superfície apresentam valores que são diferentes aos encontrados no volume do material.

²Para estes modelos, os spins são tratados como vetores em um espaço de três dimensões, permitindo assim que eles apontem em qualquer direção do espaço. Porém, estes modelos podem estar sobre redes de 1, 2, ou 3 dimensões. Aqui, é importante diferenciar entre a dimensionalidade da rede d , e a dimensionalidade dos spins D (conhecida também como dimensionalidade do parâmetro de ordem). Portanto, cada modelo define em quantas dimensões são considerados os spins ($1D$, $2D$, $3D$, ou 4 dimensões se é preciso).

2.2.2 Influência da Supercondutividade no Ferromagnetismo

Quando um supercondutor está em contato com um metal, os pares de Cooper, que são compostos por dois elétrons com spin e momento opostos, penetram certa distância no metal como no caso de uma função evanescente. Nos ferromagnetos, os elétrons dos pares de Cooper com spin-up (para acima), definidos pela orientação do campo de troca, diminuem sua energia em um valor h , enquanto que a energia dos elétrons com spin-down (para abaixo) aumenta no mesmo valor. Para compensar esta variação de energia, os elétrons spin-up aumentam sua energia cinética, ao passo que os de spin-down diminuem esta energia. Como resultado os pares de Cooper adquirem um momento de centro de massa $2\delta k_F = 2h/\nu_F$, gerando uma modulação do parâmetro de ordenamento com período $\pi\nu_F/h$ [2].

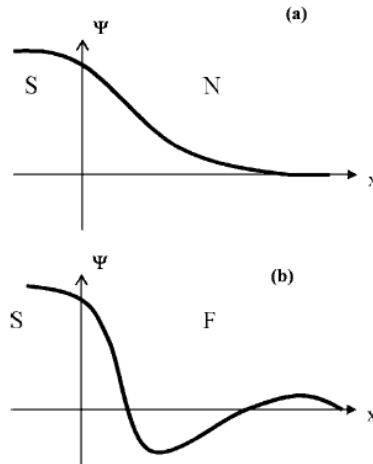


Figura 2.7: Comportamento da ordem supercondutora próxima da interface (a) supercondutor / metal normal e (b) supercondutor / ferromagneto. A continuidade da ordem na interface sugere a ausência da barreira de potencial. O salto do parâmetro de ordem supercondutor ocorre na interface (Reproduzido da referência [2]).

A ordem na camada FM pode ser modificada pela supercondutividade. A partir de uma análise padrão do sinal de ressonância ferromagnética, pode-se derivar a magnetização efetiva em função da temperatura e a espessura da camada FM $M_{eff}(T, d_F)$ (figura 2.8), onde uma redução da magnetização de saturação abaixo da T_c pode ser causada pela reconstrução da ordem magnética na camada FM devida à influência da camada SC.

Com o aumento da espessura da camada magnética, a modulação da

ordem ferromagnética diminui e acima de certo valor de espessura é neutralizada pela rigidez da energia de troca ferromagnética [17].

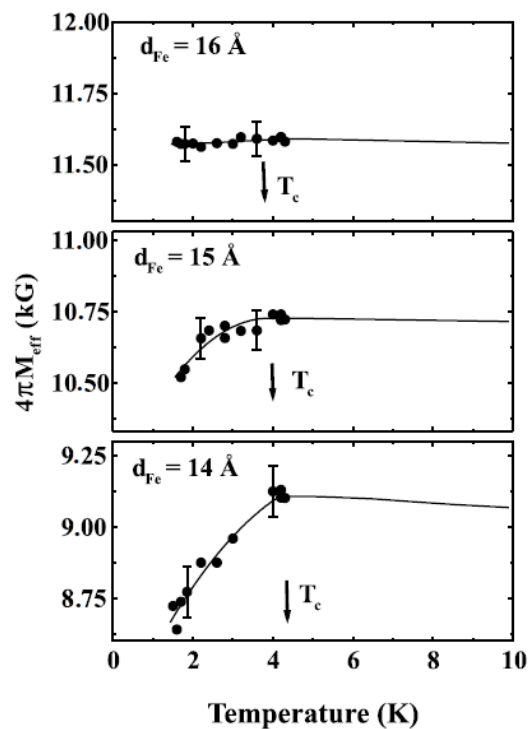


Figura 2.8: Magnetização efetiva em função da temperatura para três amostras de Nb/Fe preparadas pela técnica MBE (Reproduzido da referência [17])

Somente uma pequena modulação da ordem ferromagnética pode ocorrer próxima à interface. Isto prejudica o equilíbrio de energia (Mesmo se as estimativas mostrarem que essa hipótese não pode explicar o resultado obtido). Então as camadas FM com espessuras pequenas podem formar ilhas, reduzindo assim a rigidez magnética das mesmas, quando elas começam a sobrepor-se. Portanto, o ordenamento ferromagnético das camadas pode ser mudado pela supercondutividade e um novo estado criptoferrromagnético pode aparecer.

2.2.3 Criptoferrromagnetismo

Em algumas circunstâncias a supercondutividade pode coexistir junto com um ordenamento magnético não homogêneo. Este estado ordenado não-homogêneo é chamado criptoferrromagnetismo. Na qual a anisotropia do cristal não foi levada em conta e uma estrutura espiral aparece em vez dos domínios magnéticos comuns. Neste estado ocorre um alinhamento dos momentos magnéticos e este é ferromagnético, mas em domínios extremamente pequenos. Certamente é menor do que o comprimento de coerência ϵ_0 e a probabilidade de ordenamento ($r_s^2 \xi_0$) [23].

Bergeret [24] mostra que para um sistema de bicamadas SC/FM, considerando um ferromagneto forte, o estado criptoferrromagnético é possível desde que as camadas FM sejam suficientemente finas, ainda mesmo se o campo de troca fosse grande.

No seguinte diagrama de fases (a , λ) mostra uma possibilidade de determinar explicitamente os limites do estado criptoferrromagnético para sistemas de multicamadas, figura 2.9. Este diagrama foi elaborado de acordo com a rigidez do ferromagneto J , a espessura da camada FM (d_F), o campo de troca h do sistema. Onde $\lambda = \left(Jd_F/N_F \sqrt{2T_C D_F^3} \right) (7\zeta(3)/2\pi^2)$, $\alpha = (2h^2 d_F^2) / (D_F T_C \eta^3)$, $\eta = \nu_F/\nu_S$.³, e N_F é a densidade de estados no ferromagneto [3].

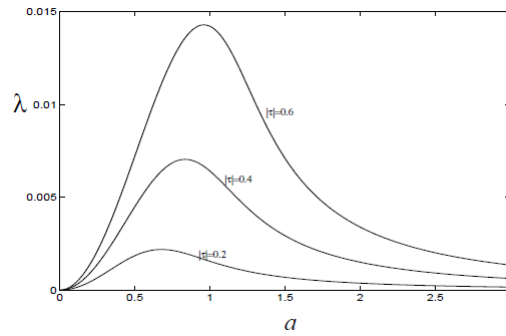


Figura 2.9: Diagrama de fase (λ , α) para diferentes valores de $|\tau| = (T_C - T)/T_C$. A área acima (abaixo) das curvas corresponde ao estado FM (criptoferrromagnético) [3].

³Estes valores de ν são velocidades de Fermi para o ferromagneto ν_F e para o supercondutor ν_S

Os cálculos mostram que o efeito de proximidade pode levar a uma estrutura espiral magnética no filme FM, mesmo que a troca de energia h é muito maior do que a energia característica da transição nos supercondutores. Este ordenamento (criptoferromagnético) é relacionado à existência de estados de menor deitado na camada ferromagnética. A estrutura espiral aumenta a energia magnética apenas por uma pequena quantidade, enquanto que a energia de interação entre o campo de troca e a supercondutividade pode ser reduzida[3].

Também existe outro mecanismo que pode reduzir a magnetização total em estruturas SC/FM e isso pode dever-se ao efeito de proximidade. Além disso, as condições para a presença do cripto ferromagnetismo podem ser analisadas em certos supercondutores, onde a supercondutividade coexiste tanto com ferromagnetismo de spin ou com ferromagnetismo originado do momento angular intrínseco dos pares de Cooper (supercondutores como Sr_2RuO_4). Considerando uma competição entre este estado com o estado meissner e estados mixtos [25].

2.3 Espessura em Sistemas de Multicamadas SC/FM

Como a supercondutividade e o magnetismo são mutuamente excludentes, o efeito de proximidade traz um grande interesse na área da física da matéria condensada. Além disso, os sistemas de multicamadas são ideais para o estudo deste efeito, já que é possível mudar a força relativa destes dois ordenamentos concorrentes somente com a variação da espessura das camadas e estudar a respectiva interação. Quando a integral de transferência dos elétrons é pequena, $T \ll T_c$, a supercondutividade pode coexistir com o ferromagnetismo em camadas adjacentes. Isso mostra que o campo de troca das camadas FM favorece o comportamento de fase π da supercondutividade, quando os parâmetros da ordem supercondutora alternam seu sinal nas camadas adjacentes SC. Para um sistema onde as espessuras das camadas SC são fixas, T_c depende da espessura das camadas FM. Geralmente isso não é usual porque muitos sistemas SC/FM podem ser fortemente anisotrópicos com comprimentos de coerência pequenos em uma direção perpendicular às camadas do sistema[2].

Resultados como a redução da temperatura supercondutora, oscilação de T_c devido ao acoplamento de fases 0 a π , e outros comportamentos, podem ser explicados pelo efeito de proximidade; onde os dois principais mecanismos

de interação nos sistemas SC/FM são:

- A interação dos pares de Cooper com o campo magnético induzido pelos momentos magnéticos (campo de troca).
- A interação de troca dos momentos magnéticos com os elétrons nos pares de Cooper.

O campo de troca ΔE_{ex} nos ferromagnetos reduz drasticamente a escala de comprimento no efeito de proximidade dos sistemas SC/FM. Isso é devido a que ΔE_{ex} favorece a polarização de spin, e assim faz decair o parâmetro de ordem supercondutor mais rápido do que em um metal normal. Isso faz com que a energia de ativação para os vórtices magnéticos nas camadas SC seja diminuída pela presença do campo de troca das camadas FM, que podem influenciar a interação vórtice-vórtice e a espessura efetiva supercondutora nos sistemas SC/FM [26].

2.4 Mudança da Ordem Ferromagnética pela Supercondutividade

A influência do ferromagnetismo sobre a supercondutividade é forte nos sistemas híbridos SC/FM, mas existe uma possibilidade de que aconteça o contrário, e a supercondutividade possa afetar o ferromagnetismo até o ponto de destruí-lo. Comparando os níveis de energia característicos para a supercondutividade e as transições magnéticas, o ganho de energia por átomo na transição magnética é da ordem da temperatura de Curie (Θ).

Por outro lado, a condensação de energia na transição supercondutora ΔE_S (equação 2.5) é menor que T_c , cerca de $\sim T_c(T_c/E_F) \ll T_c$ ⁴.

$$\Delta E_S = -N(0) \frac{\Delta_0^2}{2} \quad (2.5)$$

Onde $\Delta_0 = 1,76T_c$ é o gap supercondutor em $T = 0$.

Normalmente a temperatura de Curie é maior do que T_c , e o ferromagnetismo parece ser mais robusto em comparação à supercondutividade. Portanto a supercondutividade dificilmente pode destruir o ferromagnetismo. Porém, pode modificar-lo se tal mudança não custa muita energia. Na fase supercondutora, o ferromagnetismo é transformado numa fase de domínios magnéticos com tamanhos menores do que o comprimento de coerência supercondutor ξ_S para cada camada FM no sistema híbrido SC/FM.

⁴onde E_F é a energia de Fermi e N_0 é a densidade de níveis eletrônicos para a nuvem de elétrons no metal

No caso da transparência da interface, o parâmetro para a quebra dos pares seria dado por:

$$\tilde{\tau}_{s,0}^{-1}(\omega > 0) = ih \frac{D_S d_f \sigma_f}{D_f d_S \sigma_S} \quad (2.6)$$

Onde σ_f (σ_S), D_f (D_S) são a condutividade e o coeficiente de difusão respectivamente da camada FM (e da camada SC abaixo da T_c), e d_f (d_S) é a espessura da camada FM (e da camada S). O qual quer dizer que o campo efetivo de troca no supercondutor pode ser:

$$\tilde{h} = h \left(\frac{d_f}{d_S} \right) \left[\left(\frac{D_S}{D_f} \right) \frac{\sigma_f}{\sigma_S} \right] \quad (2.7)$$

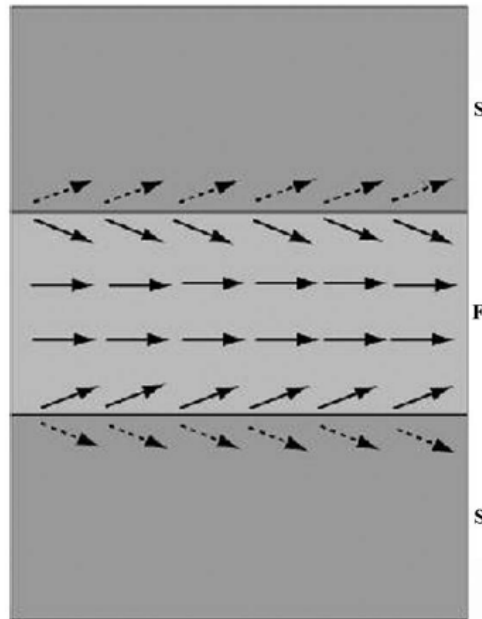


Figura 2.10: Ilustração das interações dipolo-dipolo entre as camadas SC e FM. Apenas os momentos perto da interface são afetados pela interação mútua.

Na verdade, o caso considerado de filmes finos com multicamadas SC e FM é uma situação análoga aos supercondutores magnéticos [2]. Estudos recentes mostram que a supercondutividade pode modificar a magnetização de camadas FM em sistemas SC/FM/SC, dependendo da variação da espessura da camada FM. Isso pode ser explicado em termos da interação local dipolo-dipolo entre o supercondutor e o ferromagneto na vizinhança da interface SC/FM (figura 2.10)[7].

Capítulo 3

Técnicas de Preparação e Caracterização das Multicamadas

3.1 Técnica de Deposição por Pulverização Catódica (Sputtering)

Sistemas híbridos de multicamadas SC/FM são produzidos pela técnica de pulverização catódica também conhecida como *sputtering*. O sputtering é um processo onde se gera um plasma responsável pela deposição e crescimento das multicamadas sobre o substrato. Os íons do plasma colidem com os átomos de um alvo pela ação de campos eletromagnéticos, os átomos (ou conglomerados de átomos) são arrancados quando os íons do plasma batem repetidamente a superfície do alvo (pulverização). Durante a pulverização o campo elétrico presente faz com que os átomos arrancados depositem-se sobre um substrato; como a deposição é prolongada, os átomos depositados no substrato produzem uma camada sobre ele. Já que é possível controlar a quantidade de material a ser depositado, é possível preparar filmes com camadas de diferentes materiais e também diferentes espessuras, e assim obter sistemas híbridos de multicamadas.

Quando um plasma é gerado a partir de um gás (geralmente inerte), os átomos do gás são ionizados. Inicialmente um elétron livre colide com um átomo de gás, o produto desta colisão é um íon e um elétron a mais; depois da primeira colisão o processo pode se repetir muitas vezes (como se fosse uma reação em cadeia). Também acontecem colisões entre elétrons e íons gerando de novo átomos neutros que liberam o excesso de energia da colisão em forma de fótons até que a quantidade de átomos, elétrons livres e íons chega a um

equilíbrio dependente da energia que gera o plasma. Uma das características mais importantes do plasma é que reage fortemente aos campos elétricos e magnéticos, isso porque os elétrons livres presentes no plasma podem ficar presos no campo magnético. Daí a possibilidade de usar o plasma para fazer pulverização sobre um alvo [27].

Mas é necessário levar em conta algumas das seguintes considerações:

- A energia de neutralização do íon incidente é transferida à rede sob a forma de uma transição sem emissão de elétrons secundários.
- Esses elétrons auxiliam a manutenção do plasma.
- Alguns átomos arrancados do alvo podem ser espalhados de volta ao catodo.
- Para energias muito baixas não há colisões independentes e não ocorre sputtering.
- Para íons com massa maior que a massa dos átomos do alvo, considera-se mais de uma colisão por íon.
- Para íons com massa menor que dos átomos do alvo, considera-se colisões simples com reflexão ou espalhamento.
- 95% da energia do íon é convertida em calor no alvo, portanto é preciso refrigerar o alvo (e catodo) durante o sputtering.

3.1.1 Processo de Magnetron Sputtering

A técnica de *magnetron sputtering*, usa um plasma confinado magneticamente próximo da superfície do alvo. Este plasma pode ser produzido por uma voltagem DC para a maioria dos metais, ou por uma voltagem de rádio-freqüência para os materiais isolantes à temperatura ambiente (óxidos, cerâmicas superconductoras, etc.). Os elétrons produzidos no cátodo pelo campo elétrico (\vec{E}) são acelerados contra o ânodo em um movimento helicoidal em volta das linhas do campo magnético (\vec{B}) devido a força de Lorentz (equação 3.1), onde q , m , e v são a carga, a massa e a velocidade do elétron respectivamente.

$$F = \frac{mdv}{dt} = -q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (3.1)$$

Nos magnetrons, os elétrons idealmente não atingem o ânodo, mas são presos em uma *armadilha magnética* próxima ao alvo, aumentando a eficiência

dos átomos do gás inerte, como se a pressão do gás fosse maior. O campo magnético na armadilha é mantido paralelo à superfície do alvo antes de se curvarem para fechar o circuito magnético. Nesta região (onde os campos elétricos e magnéticos são perpendiculares) a ionização é máxima, e o plasma cria um anel circular produto da erosão sobre a superfície do alvo[27].

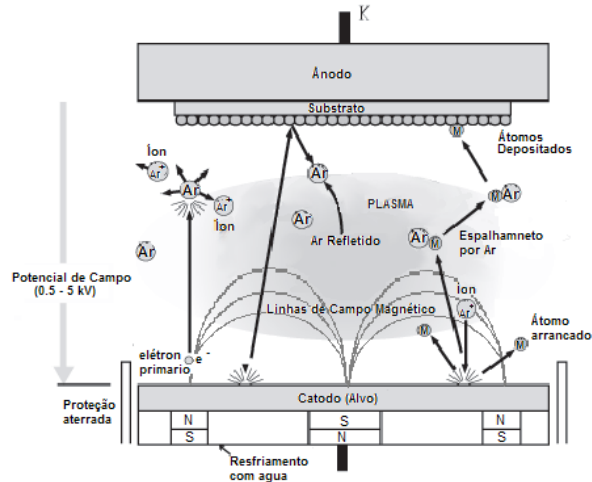


Figura 3.1: Processo de sputtering utilizando o sistema de magnetron

As amostras de multicamadas com sistemas híbridos SC/FM foram produzidas através do sistema Magnetron Sputtering no Laboratório de Filmes Finos do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas (CBPF), utilizando um sistema sputtering do tipo ATC-2400 da AJA International. Este sistema permite a deposição de diferentes materiais em forma de multicamada pela quantidade de magnetrons instalados simultaneamente no sistema (até 5). Além disso tem a vantagem de produzir camadas com materiais metálicos e isolantes. Como é mostrado na figura 3.2, o sistema tem duas câmaras de vácuo, uma delas é a câmara principal de deposição em aço inox, a outra câmara é conhecida como precâmara de carregamento; cada uma das câmaras tem um sistema de vácuo (turbo e mecânico) usado para garantir um ambiente limpo para o processo de deposição[27].

A câmara principal de deposição possui:

- 5 magnetrons onde é possível colocar os alvos do sputtering.
- 5 obturadores (um em cada magnetron) que controlam a quantidade de material para depositar sobre o substrato.
- Um porta-amostras (ou porta-substratos) rotatório que localiza o substrato sobre os magnetrons.

- Uma caixa porta substratos para processos de deposição usado para aquecer o substrato, se é preciso.
- Um garfo controlado por um sistema de molas usado para manipular os substratos em caso de fazer alguma mudança de posição ou orientação.
- Uma válvula automática tipo gaveta de 10", para ultra alto vácuo, acionada por motor de passo.

A precâmara está acoplada à câmara principal através de uma válvula manual de gaveta de 6", esta câmara é de tipo duplo Tê em aço inox; contém um garfo usado para inserir ou sacar as amostras da câmara principal, o garfo é controlado por um manipulador magnético que pode puxar ou empurrar o garfo através da válvula manual que acopla a precâmara com a câmara principal, permitindo introduzir substratos limpos para produção de outras amostras com os mesmos alvos.

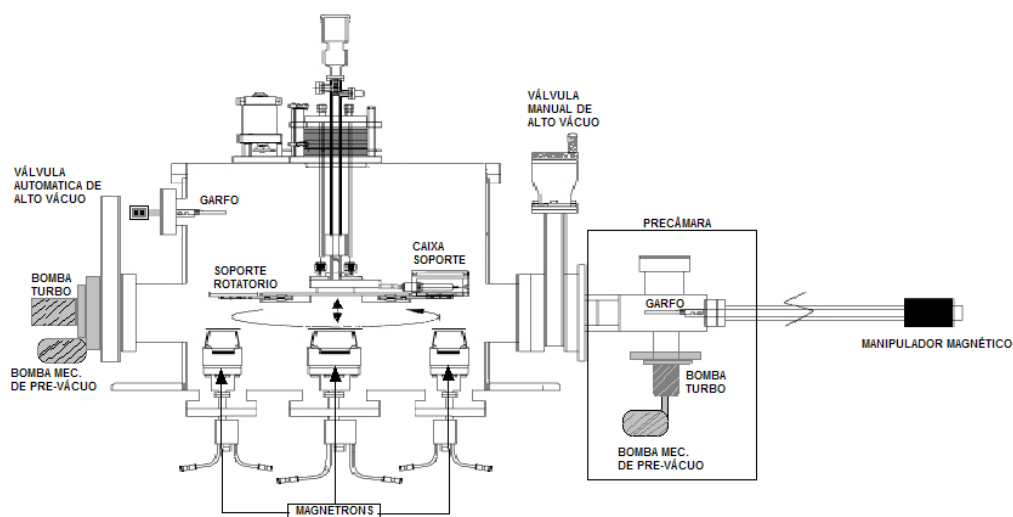


Figura 3.2: Esquema do sistema magnetron sputtering do CBPF

Como ambas câmaras têm um sistema de vácuo independente, é possível mudar o vácuo da precâmara sem que seja necessário quebrar o vácuo da câmara principal, assim quando removemos uma amostra pronta (ou introduzimos um substrato novo) manipulamos o sistema de vácuo da precâmara com a válvula manual fechada para que a câmara principal fique isolada, quando o vácuo da precâmara é quase igual a o vácuo da câmara principal (próximo a os 10^{-7} Torr), é possível abrir a válvula manual e assim mudar de substrato ou retirar a amostra. Com isso é possível trocar de substratos de

uma forma mais rápida e contínua, sem ter que quebrar o vácuo na câmara principal[27].

3.2 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, esta é resultante do espalhamento proveniente da modulação química das camadas, e a região de difração ou altos ângulos ($2\theta > 15^\circ$), onde depende do comprimento de coerência estrutural normal às camadas.

3.2.1 Difração em Altos Ângulos

Nesta região de altos ângulos, esta técnica 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. A radiação refletida 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 $2d\sin\theta$, onde d é distância interplanar e θ é o ângulo de incidência. Para interferência construtiva, esta diferença de caminhos é dada pela lei de Bragg[28]:

$$2d\sin\theta = n\lambda \quad (3.2)$$

Onde λ 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:

$$d = \frac{2\pi}{|\vec{G}|} \quad (3.3)$$

Com estes dados se pode 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. Embora, 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[28]:

$$\xi = \frac{0.9\lambda}{b \cos\theta} \quad (3.4)$$

Onde ξ é o tamanho de grão, b é a largura de linha a meia altura, e θ o ângulo de incidência.

3.2.2 Refletividade ou Difração em Baixos Ângulos

Na região de baixos ângulos, as curvas de refletividade permitem calcular a espessura das camadas, a rugosidade e o grau de interdifusão atômica nas interfaces das multicamadas. Quando um filme de densidade uniforme é depositado em 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(figura3.3).

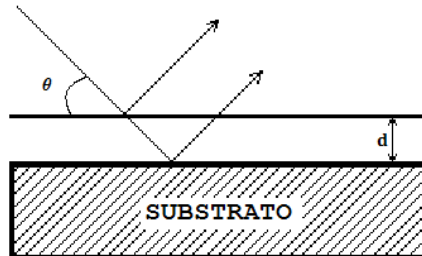


Figura 3.3: Esquema de interferência entre os feixes difratados nas interfaces ar/filme e filme/substrato.

Estas oscilações são chamadas franjas de Kiessig. Desta forma, o ângulo que o raio incidente faz com o substrato não é simplesmente θ e sim um ângulo de incidência corrigido θ_c , que sofreu refração ao passar do ar para o filme e poder ser obtido através da lei de Snell[29].

$$n \cos\theta_c = \cos\theta \quad (3.5)$$

CAPÍTULO 3. TÉCNICAS DE PREPARAÇÃO E CARACTERIZAÇÃO 35

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

$$n = 1 - \delta - i\beta \quad (3.6)$$

δ e β podem ser obtidos partindo de

$$\delta = \frac{e^2\lambda^2}{2\pi m_e c^2} (Z + f') N_a \quad (3.7)$$

$$\beta = \frac{\lambda\mu_l}{4\pi} \quad (3.8)$$

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 μ_l é o coeficiente de absorção linear[30]. A lei de Bragg modificada pode ser escrita como

$$k\lambda = 2d \sin^2\theta_c \quad (3.9)$$

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:

$$\sin^2\theta = \left(\frac{\lambda n}{2d}\right)^2 + 2\delta \quad (3.10)$$

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

$$a = \left(\frac{\lambda}{2d}\right)^2 \quad (3.11)$$

Onde a espessura do filme é obtida

$$d = \frac{\lambda}{2\sqrt{a}} \quad (3.12)$$

Para o caso de uma multicamada, com um superperíodo Λ 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 espesura total t da multicamada usando a relação obtida a partir da lei de Bragg[31]:

$$d = \frac{\lambda}{2\text{Sin}\Delta\theta} \quad (3.13)$$

Usando a posição angular dos picos de Bragg é possível determinar o super-período, de igual maneira que se obtém t na equação 3.10. Mudando t por Λ , tem-se:

$$\text{sin}^2\theta = \left(\frac{\lambda n}{2\Lambda}\right)^2 + 2\delta \quad (3.14)$$

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:

$$Q(z) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left\{\frac{-z^2}{2\sigma_y^2}\right\} \quad (3.15)$$

Onde z é a posição na interface e σ é o desvio padrão meio ou rugosidade meia quadrática. Experimentalmente um dos parâmetros que pode ser calculado das medidas de refletividade é a rugosidade quadrática média.

3.2.3 Difração de Raios-X por Luz Síncrotron

A luz síncrotron é a intensa radiação eletromagnética produzida por elétrons de alta energia em um acelerador de partículas. A luz síncrotron abrange uma ampla faixa do espectro eletromagnético: Raios-X, Luz Ultravioleta e Infravermelha, além da Luz Visível, que sensibiliza o olho humano, são emitidas pela fonte. É com esta luz que cientistas estão descobrindo novas propriedades físicas, químicas e biológicas existentes em átomos e moléculas, os componentes básicos de todos os materiais.

O funcionamento de um síncrotron está baseado em um campo magnético que causa a deflexão da partícula para uma órbita circular, e cuja intensidade do campo é modulada de forma cíclica, mantendo assim órbitas cujo raio é bastante estável e constante, apesar dos elétrons ganharem energia. A aceleração das partículas é feita pelo campo elétrico presente no síncrotron, o qual faz com que as partículas ganhem velocidade e portanto energia que depois será irradiada. Geralmente as partículas aceleradas no síncrotron são prótons ou elétrons. Os síncrotrons de prótons são os aceleradores de partículas que atingem a maior energia chegando a 800 GeV, enquanto o

síncrotron de elétrons atinge no máximo 12 GeV. A velocidade do próton só chega próxima da velocidade da luz no vácuo com uma energia acima de 1 GeV. O próton acelerado não perde energia por radiação (ou se perde muito pouco). Os elétrons adquirem uma velocidade muito alta a energias relativamente baixas, e quando são defletidos pelos campos magnéticos, os elétrons irradiam energia eletromagnética próxima do comprimento de onda dos raios X. Essa energia irradiada precisa ser reposta pelo sistema acelerador.

O Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS) é um acelerador de partículas (elétrons) de forma circular, no qual os campos eletromagnéticos são responsáveis pela aceleração e mudança de direção das partículas. É possível dizer que a radiação síncrotron é a intensa radiação eletromagnética produzida quando os elétrons atingem velocidades próximas à da luz em trajetória circulares.

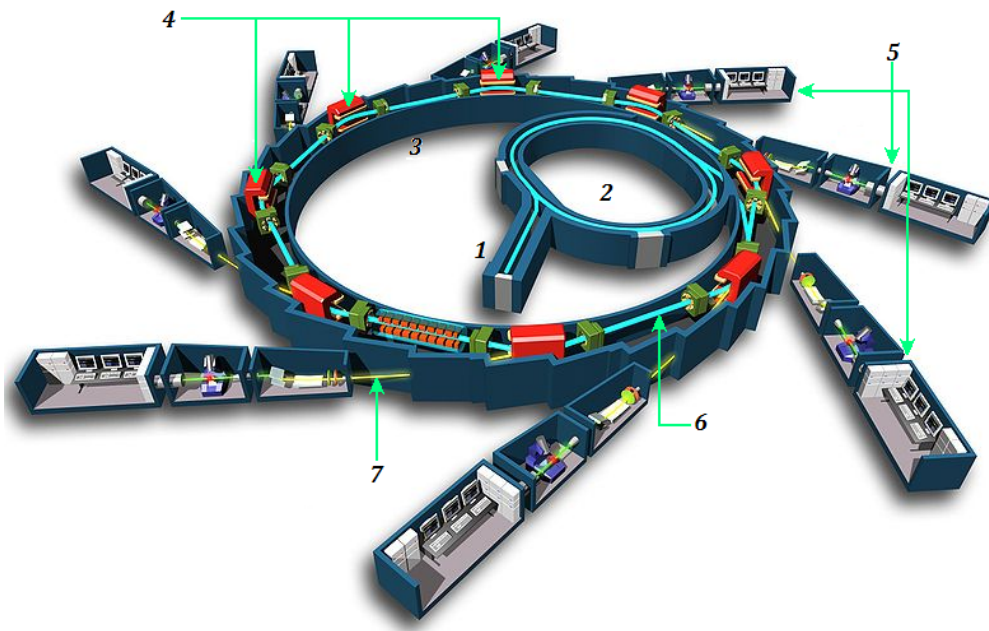


Figura 3.4: Esquema do Laboratório de Luz Síncrotron geralmente composto por um acelerador linear de elétrons(1), o Booster(2), o anel de armazenamento(3), os eletroímãs(4), e as linhas de pesquisa(5); onde pode-se ver também a trajetória dos elétrons(6) e as trajetórias de luz síncrotron(7).

A radiação síncrotron no LNLS é produzida por um acelerador *LINAC* de 18 m de comprimento, onde os elétrons são arrancados de uma placa metálica por rádio-freqüência (476 MHz) com uma energia de 120 MeV e impulsiona-dos em linha reta em uma câmara de ultra-alto-vácuo (10^{-9} Torr). Este feixe

de elétrons é direcionado a um acelerador circular intermediário chamado *booster* de 33m de diâmetro, onde a energia é ampliada para 500 MeV. Com esta nova impulsão o feixe é direcionado para o acelerador principal (anel de armazenamento), com 93 m de perímetro, onde o feixe de elétrons atinge uma energia máxima de 1,37 GeV. No anel de armazenamento é onde é gerada a radiação síncrotron, tem 12 eletroímãs (dipolos) que desviam a trajetória dos elétrons (trajetória circular) em 30 graus, cada vez que a trajetória é mudada o elétron libera energia em forma de radiação eletromagnética (luz síncrotron), a qual é direcionada às diferentes linhas de pesquisa (figura 3.4).

Atualmente o LNLS tem de 16 linhas de luz para diferentes tipos de pesquisas:

1. SAXS1-SAXS2 Espalhamento de Raios-X a Baixos Ângulos
2. MX1-MX2 Cristalografia de Macromoléculas
3. Gerador de Raios-X de Anodo Rotatorio
4. SXS Espectroscopia de Absorção de Raios-X MOLES
5. XAFS1 Estrutura Fina de Absorção de Raios-X (4 – 24 keV)
6. XAFS-2 Estrutura Fina de Absorção de Raios-X (4 – 7 keV)
7. TGM Espectroscopia de Ultravioleta de Vácuo
8. VU-VF Fluorescência no Visível e Ultravioleta (2 – 6 eV)
9. DXAS Espectroscopia de Absorção de Raios-X Dispersivo (5 – 14 keV)
10. SGM Espectroscopia de Ultravioleta de Vácuo e de Raios-X Moles (250 – 1000 eV)
11. XRF Fluorescência de Raios-X (4 – 22 keV)
12. XPD Difração de Raios-X em Policristais (6 – 12 keV, 1 – 2 Å)
13. XRD1 - XRD2 Difração de Raios-X (5 – 14 keV, 0.9 – 2.5 Å)

LINHA XRD2 DIFRAÇÃO DE RAIOS X (5 – 14 keV, 0.9 – 2.5 Å)

É comumente utilizada para o estudo de estruturas policristalinas, com a técnica de difração de pó de alta resolução em temperatura ambiente, caracterização cristalográfica de monocristais em baixa temperatura (10 K -

300 K), estudo de magnetismo microscópico e ordenamento orbital, caracterização de filmes finos, pontos quânticos, heteroestruturas, e de estruturas monocristalinas por difração múltipla de feixes. A linha oferece também recursos para a realização de medidas por difração por incidência rasante, difração anômala, medidas de tensões residuais por DRX e montagem de experimentos em configurações especiais. Esta linha está composta pelos seguintes elementos.

Fonte: Ímã defletor $D10(4^\circ)$, a $y = 0,263$ mm, fluxo da amostra 2×10^{10} fotons/s*mrad a 8 keV.

Monocromador: Monocromador de duplo cristal de Si (111) com saída constante; faixa de energia 4,000 – 15000 keV. Possibilidade de uso de monocromador channel-cut Si(111) e Si(220), assim como monocromador de quatro cristais de alta resolução.

Sistema focalizante: Focalização sagital (6 mrad) por curvatura elástica do segundo cristal do monocromador.

Goniometria: Difratorômetro de seis círculos (Huber) com analisador theta-dois theta e analisador de polarização. É possível utilizar a geometria de incidência rasante assim como a geometria $q-2q$ em baixa temperatura.

Detectores: Cintilador Cyberstar, detector pin-diode, detector de estado sólido de Ge ultra puro e detector sensível à posição (PSD).

Instrumentação complementar: Criostato APD de circuito fechado de hélio (10 K - 300 K). Criostato MMR por efeito Joule-Thomson (90 K - 600 K).

3.3 Medidas de Magnetização por PPMS

As medidas de magnetização das amostras foram efetuadas no magnetômetro PPMS do CBPF.

3.3.1 O PPMS (*Physical Property Measurement System*)

O PPMS é um sistema de última tecnologia usado na caracterização de materiais. A finalidade deste sistema é realizar caracterizações físicas sobre uma variedade de amostras (seja pastilha, pó, monocristal, filme fino etc.) em um amplo intervalo de temperaturas e na presença de um campo magnético aplicado. Além disso uma das vantagens do PPMS é a possibilidade de realizar diferentes tipos de medidas, o que permite suprir diferentes necessidades na pesquisa. As aplicações de medida no PPMS são:

- Medidas Térmicas
 - Capacidade Calorífica
 - Transporte Térmico
- Medidas de Transporte Elétrico
 - Transporte AC
 - resistência DC
- Medidas Magnéticas
 - Susceptibilidade AC
 - Magnetização AC/DC
 - Magnetometria VSM

O Magnetômetro VSM (*Vibrating Sample Magnetometer*)

Este método 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 [32]. O princípio básico de operação de um VSM é obtendo uma variação de fluxo magnético

ocorrendo indução de uma voltagem em uma bobina detectora. A voltagem induzida dependente do tempo é dado pela seguinte equação.

$$V_{coil} = \frac{d\Phi}{dt} = \left(\frac{d\Phi}{dz} \right) \left(\frac{dz}{dt} \right) \quad (3.16)$$

Onde Φ é o fluxo magnético contido pela bobina detectora, z é a posição vertical da amostra com respeito à bobina, e t é o tempo. Para uma oscilação sinusoidal da posição da amostra temos que:

$$V_{coil} = 2\pi FMCmAsin(2\pi ft) \quad (3.17)$$

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

A aquisição das medidas do momento magnético implica a medida dos coeficientes da resposta da voltagem sinusoidal pelas bobinas de detecção, a figura 3.5 mostra como é realizado esse processo com o PPMS VSM.

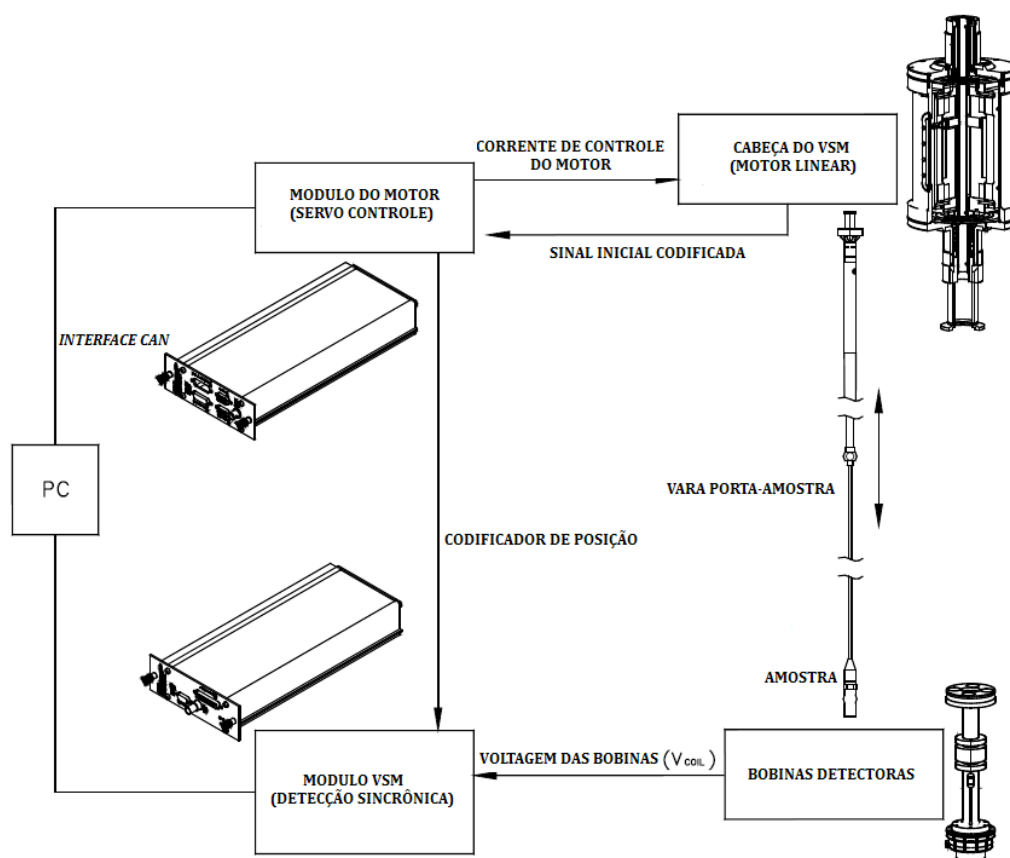


Figura 3.5: Esquema do princípio de operação para o PPMS VSM

O Conjunto de Bobinas Detectoras

O módulo suporte das bobinas detectoras contém um gradiômetro de primeiro ordem e 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 ter medidas de uma qualidade satisfatória em um tempo menor do que o SQUID. As dimensões do suporte de Bobinas Detectora padrão são mostradas na figura 3.6. O centro do gradiômetro está localizado a $40,1mm$ acima da posição correspondente à superfície do suporte principal. Esta posição corresponde à posição central dos magnetos de campo alto ($14T$ ou maior) e a região de homogeneidade de campo menor ($7T-9T$) [33].

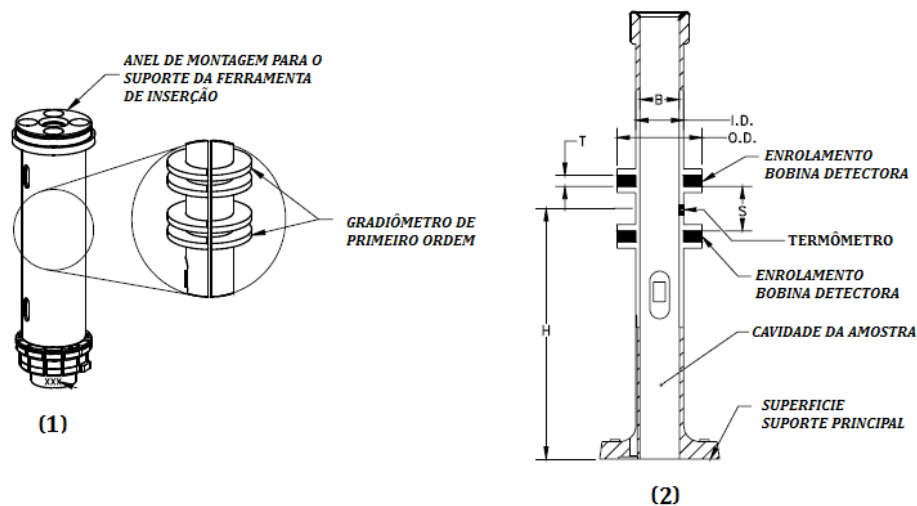


Figura 3.6: (1) Módulo padrão de bobinas detectoras , e (2) diagrama interno do módulo , com as dimensões: Cavidade da amostra (B) = $6,33mm$, espessura da bobina (T) = $1,78mm$, espaçamento entre bobinas (S) = $7,11mm$, diâmetro interno das bobinas ($I.D.$) = $7,73mm$, diâmetro externo das bobinas ($O.D.$) = $13,7mm$, altura sobre a superfície do suporte principal (H) = $40,1mm$.

Montagem das Amostras no VSM-PPMS

Uma medida VSM consiste de uma sequência de operações de centralização, seguida pela oscilação da amostra e detecção sincrônica da voltagem induzida no conjunto de bobinas pela amostra magnetizada. Esta seção mostra o processo de montagem das amostras no VSM, para assim, obter medidas com ótima qualidade.

Baseado no manual de operação do VSM-PPMS [33], a qualidade das medidas no VSM é afetada pelas dimensões, pela forma, e pelo tamanho dos momentos magnéticos da amostra. Portanto, é necessário levar em conta as seguintes considerações:

- A geometria das bobinas de detecção no VSM PPMS restringe as dimensões das amostras que podem ser medidas.
- Para que a amostra junto com o suporte possa caber nas bobinas de detecção, seu diâmetro deve ser inferior a 6,35 mm (0,25 polegadas).
- As amostras devem ter uma pequena dimensão vertical em relação à dimensão inicial das bobinas de detecção (7,11 mm).
- Os momentos magnéticos das amostras devem ser maiores do que aproximadamente 10^{-6} emu, para que possam ser detectados no VSM.

Para a montagem e medida de filmes finos no VSM, seguimos o seguinte processo [33]:

1. Levando em conta as considerações anteriores, se a amostra é maior que as dimensões esperadas, cortamos uma parte da mesma com largura menor que 6,35 mm e comprimento abaixo de 7,11 mm.
2. Colocamos a amostra cortada no suporte de quartzo em forma de remo mostrado na figura 3.7.
3. Para centralizar a amostra no suporte porta-amostras, utilizamos a estação de montagem da amostra para medir a distância do centro da amostra, como mostra a figura 3.8, esta distância é chamada *offset* da amostra.
4. A amostra é fixada (ou empacotada) no suporte com uma fita de teflon, isso é para evitar que a amostra se desloque do porta-amostras ou caia no interior do VSM. É preciso verificar se o empacotamento está livre de cortes ou dobras, o que poderia aparecer como um sinal não desejado na medida.

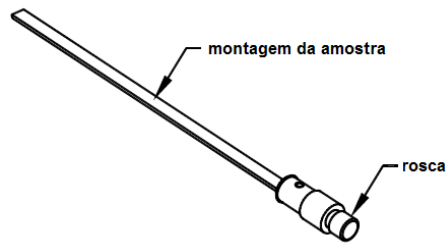


Figura 3.7: Suporte porta-amostras em forma de remo para filmes finos e amostras laminares.

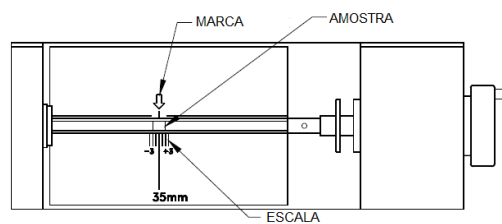


Figura 3.8: Centralização da amostra com a estação de montagem.

5. O suporte é instalado (ou aparafusado) na vara porta-amostras, e colocamos a vara na cavidade central do VSM para proceder com as medidas.
6. Para preparar o controle de calibração e medida, usamos a opção de instalar a amostra (*Install/Remove Sample Wizard*) no software de controle.
7. Antes de medir, a amostra precisa estar no espaço entre as bobinas, onde a posição de centralização deve-se manter estável até cerca de 0,1 mm no centro das bobinas (figura 3.9), para isso, o VSM tem um processo de calibração conhecido como *"touchdown"*, onde é mantida a posição central.
8. Com a posição central calibrada, o módulo do motor do VSM está programado para oscilar a amostra no centro das bobinas com uma frequência e amplitude pré-determinadas. A tensão induzida nas bobinas é então amplificada pelo pré-amplificador, e detectada pelo módulo de detecção de modelo CM-B VSM. O módulo de detecção VSM também lê a posição da amostra em tempo real, a partir do módulo do motor. Assim a detecção é sincronizada, esta opção pode ser feita também usando o software de calibração do VSM.

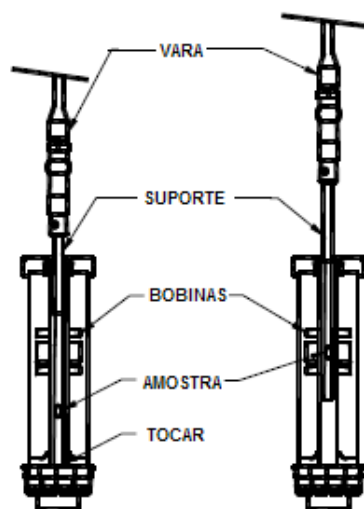


Figura 3.9: Processo da centragem “touchdown”

9. Depois de calibrar a posição e o sinal de resposta, resfriamos o sistema em três passos, primeiro baixamos a temperatura até um valor de 20 K e esperamos trinta minutos, logo resfriamos mais até chegar a 8 K e aguardamos mais dez minutos, isso é feito para obter um equilíbrio térmico e assim descemos mais a temperatura. Finalmente resfriamos até 2 K para fazer a primeira medida.
10. Ligamos o campo magnético externo em paralelo com intensidade determinada manualmente, e seguimos com a medida da resposta magnética da amostra.
11. Para medidas com temperaturas maiores, aquecemos o sistema até a temperatura desejada, esperamos um tempo para obter equilíbrio térmico, e voltamos a medir.
12. Cada medida é registrada em um arquivo que será salvo no computador de controle pelo software do VSM com um nome definido pelo usuário.

Para mudar de amostra, usamos a opção de remover a amostra no software de controle (*Install/Remove Sample Wizard*), retiramos a amostra, e repetimos os passos anteriores e salvamos cada medida no computador para análises posteriores [33].

3.4 Transporte Elétrico

Esta seção descreve o método de medida de resistência, e a função do criostato He^4 , que é utilizado para obter as medidas em baixas temperaturas aqui apresentadas.

3.4.1 Método de Medida da Resistividade Elétrica

Geralmente, os metais, semicondutores ou isolantes, obedecem a lei de Ohm. A lei de Ohm declara 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 $V = I \cdot R$ [34, 35]. 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, ρ é um tensor de segunda ordem. No experimento, o método de quatro pontas é um método comum de medida de resistência elétrica [36, 37]. Nele, os fios estão ligados a um material em quatro pontos com uma tinta condutora. Através de dois destes pontos uma corrente é aplicada na amostra e uma voltagem aparece em dois pontos de acordo com a lei de Ohm. Usando o método de quatro pontos, que é mostrado na figura 3.10, em vez de apenas dois pontos, a resistência do contato elétrico e dos fios e cabos podem ser ignorados. A resistividade elétrica é calculada usando a seguinte relação:

$$\rho = \frac{R \cdot A}{l} \quad (3.18)$$

Onde ρ é a resistividade, R é a resistência elétrica de uma amostra uniforme de material medida em Ohms, A é a área transversal da amostra que é medida em metros quadrados, e l é o comprimento entre dois contatos. Os contatos elétricos na amostra são feitos usando tinta de prata (Alfa Aesar) e fios de platina de $25 \mu m$ de diâmetro (Alfa Aesar). Os fios são conectados ao suporte da amostra com solda de Sn (estanho). Contatos ruins podem causar problemas na medida de transporte. Portanto os contatos devem ser bem feitos e resistentes à variação de temperatura. O stress térmico devido a variação de temperatura pode enfraquecer ou quebrar um contato. Um contato ruim parece funcionar em temperatura ambiente, mas com a redução da temperatura passa a funcionar mal[38].

Uma ponte de resistência AC (modelo LR-700, Linear Research) foi usada para realizar as medidas de resistividade. Este instrumento aplica uma corrente AC de 16 Hz. A faixa possível de medida de resistência com esta ponte é de $2m\Omega$ a $2M\Omega$ com uma precisão de 1 parte em 200.000.

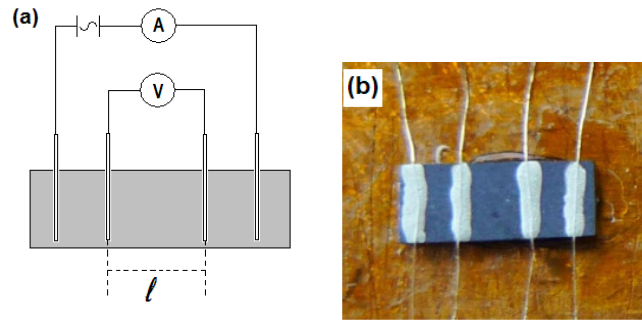


Figura 3.10: Desenho esquemático do método de quatro pontos utilizado para medir a resistividade elétrica (a), e disposição dos fios sobre uma amostra para usar este método (b).

A LR-700 utiliza uma técnica de *lock-balance* com quatro fios para medir a resistência. Um multiplexador LR-720-8 (Linear Research) é usado para conectar todos os contatos das amostras para a ponte de resistência AC. Este multiplexador seleciona os sinais de várias amostras e envia os sinais para a ponte de resistência em sequência. Assim, podemos medir várias amostras com correntes independente em sequência[38].

3.4.2 Método de Medida da Magneto-Resistência

A magneto-resistência é descrita como a variação da resistência com o campo magnético aplicado. Para esta medida, usamos o mesmo método descrito na seção anterior para medir a resistividade elétrica e aplicamos um campo magnético externo. Ao compararmos os valores de resistividade com campo magnético e sem campo magnético, a relação magneto-resistência é calculada através da seguinte equação.

$$MRR = \left(\frac{\rho_H - \rho_0}{\rho_h} \right) \times 100 \quad (3.19)$$

Onde ρ_H é a resistência elétrica na presença do campo magnético, e ρ_0 é a resistência elétrica com campo magnético zero.[38]

3.4.3 Criostato He^4

Para as medidas em baixas temperaturas, utilizamos um criostato He^4 Oxford de temperatura variável na faixa de 1,5 K a 300 K. Além disso, este criostato tem uma bobina supercondutora que produz um campo magnético de até 10T. Na figura 3.11, temos o esquema do criostato Oxford que foi utilizado durante todas as medidas de resistividade e de magneto-resistência. As partes principais do criostato são a câmara de vácuo, o reservatório de hélio líquido, o espaço da amostra e o magneto supercondutor. O criostato é delimitado pela câmara de vácuo que fornece um isolamento térmico entre o hélio líquido e a atmosfera. O reservatório de hélio é conectado com o espaço da amostra por uma válvula capilar. Ao controlar a válvula capilar, podemos permitir que o hélio líquido flua para o espaço da amostra. O reservatório de hélio líquido pode ser bombeado a uma temperatura base de cerca de 1,5K, utilizando uma bomba mecânica.

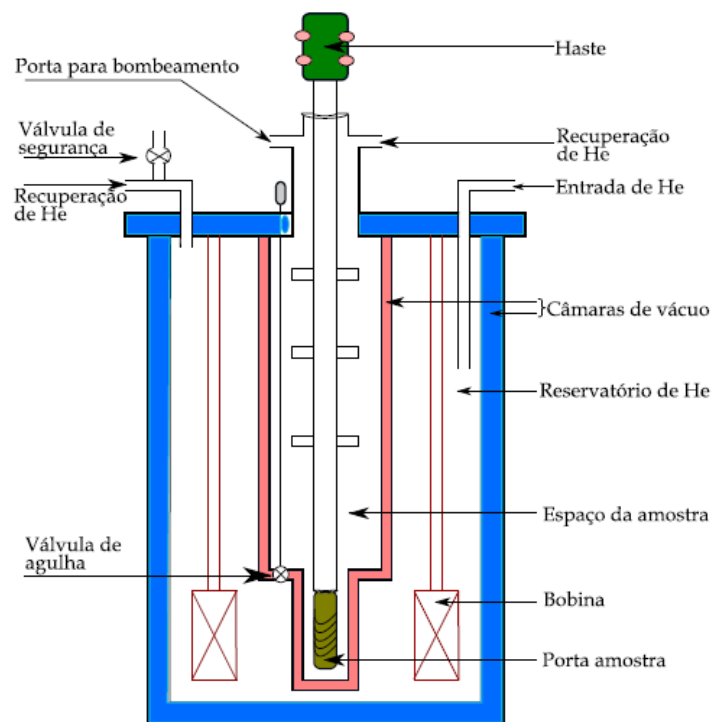


Figura 3.11: Diagrama esquemático do criostato Oxford.

CAPÍTULO 3. TÉCNICAS DE PREPARAÇÃO E CARACTERIZAÇÃO 50

O porta-amostras é conectado a uma haste de medida. A haste de medida tem toda a fiação para os contatos das amostras, do sensor de temperatura e o aquecedor. O comprimento da haste é ajustável a fim de colocar a amostra no centro do magneto. O sensor de temperatura calibrado Cernox da LakeShore é fixado no porta-amostras para monitorar a temperatura. O controlador de temperatura LakeShore-340 foi usado para medir e controlar a temperatura. Uma bobina de Constantan, que é enrolada em torno do porta-amostras é utilizada como aquecedor. O aquecedor está ligado ao controlador de temperatura LakeShore, que alimenta o aquecedor para a variação e o controle da temperatura.

A corrente para o ímã é fornecida por uma fonte de alimentação de Oxford (Oxford Superconducting magnetic power supply IPS 120-10)[38].

Capítulo 4

Preparação das Multicamadas

Para obter amostras de sistemas híbridos SC/FM utilizou-se a técnica empregada na preparação de filmes finos e multicamadas chamada *magnetron sputtering*, a qual foi detalhada anteriormente (seção 3.1). Os materiais usados para criar os filmes foram depositados sobre substratos de Si(100) monocristalino com polimento por uma face somente. O processo de preparação das amostras é detalhado no seguinte procedimento:

- Corte do Substrato: Onde o substrato de Si, que geralmente vem em apresentação de disco com $100mm$ de diâmetro, é cortado em pedaços de dimensões menores (aproximadamente $10mm \times 8mm$) para uma ótima manipulação no processo de deposição.
- Limpeza dos Substratos.
- Deposição das multicamadas.

4.1 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[39]:

1. Colocar os substratos dentro de um recipiente com água deionizada, adicionando uma quantidade pequena de sabão neutro Extran (3 gotas para cada $50ml$).
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 $25ml$), e colocar o recipiente no ultra-som por outros 10 minutos mais.
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.

4.2 Deposição das multicamadas

Os filmes são preparados através da técnica de pulverização catódica ou também chamada sputtering (figura 3.1). Neste caso os parâmetros do processo são ajustados para se obter as composições desejadas. Os filmes finos das amostras são produzidos sob a forma de monocamadas ou multicamadas a partir dos alvos de materiais puros ou ligas existentes selecionados de acordo como 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 no porta substratos) para inseri-lo no sistema sputtering (figura 3.2). O porta-substrato é introduzido manualmente na precâmara inserindo-o no garfo, posteriormente, fecha-se a escotilha da precâmara e ligam-se as bombas de vácuo (primeiro a mecânica e depois a turbo). Quando o vácuo na precâmara 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. 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, a válvula manual de alto vácuo é fechada. Com o porta-substrato em posição, segue o processo de deposição explicado na seção 3.1 (uma visão mais detalhada do processo pode ser encontrada em [39]).

4.2.1 Calibração das Taxas de Deposição

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 calcular estas quantidades, é preciso conhecer o valor da corrente necessária para o início da deposição de cada material, para isto, verificamos a presença do plasma em cada alvo e aumentamos este valor de corrente até que o plasma seja observado (tabela 4.2), e então definimos um tempo de exposição do substrato para preparar monocamadas de cada elemento desejado dos alvos (tabela 4.1). As taxas de deposição são determinadas através da análise do espaçamento das franjas de Kiessig, obtidas pelas medidas de refletividade de raios-X (baixos ângulos) das monocamadas de cada material.

Os alvos utilizados para a criação de sistemas híbridos nesta tese são: Nb, Co, NiFe (ou permalloy) e Ag. Para determinar as espessuras depositadas nas monocamadas de calibração, foram analisados os espaçamentos das franjas de Kiessig, partindo da equação 3.12, onde o comprimento de onda da radiação K_α do cobre é $\lambda = 1,5418\text{\AA}^1$, obtemos a espessura em filmes de monocamadas depositados em tempos predeterminados, onde foram mantidas as seguintes condições físicas para qualquer deposição:

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

Por exemplo, pode-se partir da curva de refletividade de algum dos materiais usados nesta tese para a criação de multicamadas. Neste caso é usada uma amostra em monocamada de cobalto (Co) depositada sobre um substrato de silício, $Si(111)$. Usando um gráfico do espectro de refletividade de raios-X (figura 4.1(a)), é possível ver as franjas de Kiessig, com as posições angulares dos máximos nas franjas é possível plotar um gráfico de $\sin^2(\theta)$ em função do número de medidas n , e fazer um ajuste para conhecer a função que representa o gráfico 4.1(b). A função encontrada a partir deste ajuste é $f(x) = B2x^2 + B1x + Intercept$, que pode ser igualada com a equação 3.10, (onde $B2 = a$ e $B1 = b$). O valor do coeficiente angular na equação de 2º grau é representado no ajuste do gráfico com o valor de $B2$, partindo deste valor e o valor de λ , definimos a espessura final da monocamada com a equação 3.12 (como é mostrado na seção 3.2.2).

¹para o cátodo de um equipamento de raios-X convencional

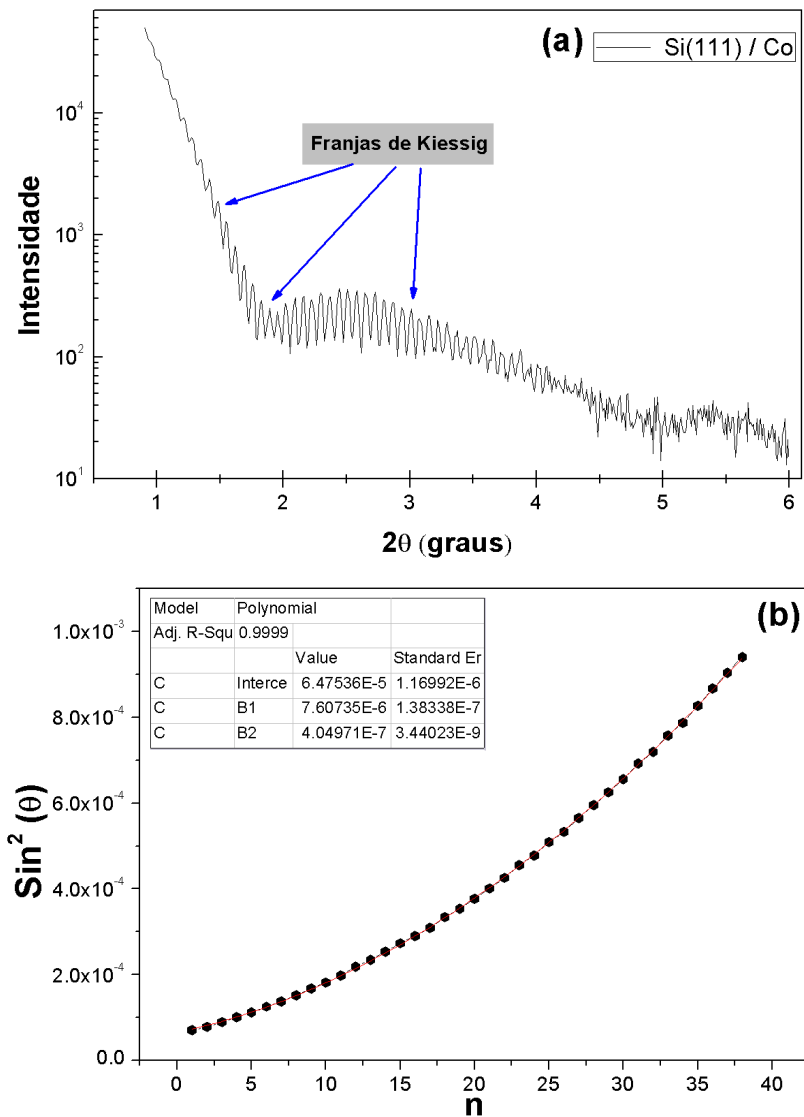


Figura 4.1: **(a)**Espectro de refletividade de raios-X de um filme de Co depositado em substrato de Si (111). **(b)**Gráfico de $\sin^2(\theta)$ vs n e o ajuste com a equação $f(x) = B2x^2 + B1x + Intercept$. A inserção no gráfico mostra os valores de B1, B2 e o ponto de intersecção com o eixo $f(x)$.

Contando que as condições físicas antes detalhadas mantenham-se estáveis, a taxa de deposição T_x é obtida da divisão entre a espessura calculada d pelo tempo de deposição t

$$T_x = \frac{d}{t} \quad (4.1)$$

Levando em conta o tempo de deposição usado para material é $t = 800s$, obtém-se finalmente a taxa de deposição do cobalto ($\Delta_{Co} = 1,523\text{Å/s}$). Os valores das taxas de deposição de cada alvo usado para os sistemas híbridos são calculados a partir da equação 4.1, e apresentados na tabela 4.1.

Alvo	Tempo de deposição (s)	Espessura (Å)	Taxa (Å/s)
Nb	1490	524	0,352
Co	800	1211	1,52
NiFe	615	725	1,18
Au	455	559	1,23

Tabela 4.1: Relação de alvos usados na preparação dos sistemas híbridos

De posse desses valores de taxas de deposição de cada alvo usado é possível definir as condições fundamentais para a criação dos sistemas híbridos em multicamadas (Tabela 4.2).

Alvo	Corrente (mA)	Voltagem (V)	Potência (W)	Taxa (Å/s)
Nb	55	317	18	0,352
Co	104	405	42	1,52
NiFe	97	411	40	1,18
Au	30	446	14	1,23

Tabela 4.2: Taxas de deposição dos alvos e valores correspondentes às fontes de ignição DC.

4.2.2 Amostras de Multicamadas Preparadas nesta Tese

Com as taxas de deposição dos alvos usados nesta tese, as condições físicas de trabalho e os valores correspondentes das fontes de ignição DC (tabela 4.2) já conhecidos, é possível preparar as amostras de sistemas híbridos SC/FM, somente calculando os tempos de deposição para cada camada na amostra.

As diferentes séries de amostras preparadas são apresentadas com a seguinte configuração (Figura 4.2): substrato / Multicamada (SC/FM) / camada SC / camada protetora, onde a camada SC é uma camada de Nb de espessura igual às camadas de Nb depositadas na multicamada, e a camada protetora é uma camada de material condutor (geralmente Au ou Ag).

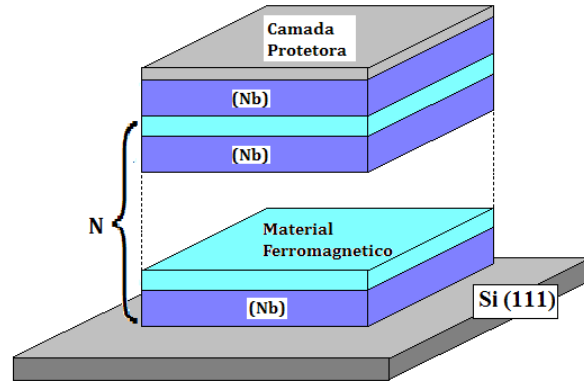


Figura 4.2: Ilustração esquemática dos sistemas híbrido, onde N é o número de bicamadas no sistema híbrido SC/FM (Nb/Ferromagnético).

As espessuras apresentadas são as espessuras nominais, as quais foram estimadas com as respectivas taxas de deposição de cada elemento. Na tabela

Sistema	Estrutura	Espessura d (Å)
Nb/Co	$Si/[Nb(500\text{Å})/Co(d)] \times 5/Nb(500\text{Å})/Au(50\text{Å})$	50, 100, 200
Nb/NiFe	$Si/[Nb(500\text{Å})/NiFe(d)] \times 5/Nb(500\text{Å})/Au(50\text{Å})$	100, 200

Tabela 4.3: Configurações do sistema híbrido SC/FM com suas respectivas espessuras.

4.3 são listadas as séries de amostras preparadas neste trabalho de tese. O índice $\times 5$ corresponde ao número de bicamadas, as espessuras variáveis são denotadas por d .

Os sistemas híbridos SC/FM (Nb/Co e Nb/NiFe) são caracterizados estruturalmente com difração de raios-X (DRX) em altos e baixos ângulos usando luz síncrotron, para conhecer a rugosidade superficial, a espessura do filme (baixo ângulo)², e verificar a estrutura dos filmes depositados (alto ângulo). As medidas de magnetização também são realizadas usando o PPMS VSM.

²Neste caso, toma-se a curva de refletividade e esses valores são obtidos através da simulação dessa curva com o programa *WINGIXA* da Phillips, o qual fornece valores muito precisos tanto da espessura como da rugosidade nas interfaces.

Capítulo 5

Resultados

Neste capítulo são apresentados os resultados experimentais obtidos pelas técnicas de medida antes detalhadas. As medidas foram feitas em amostras de sistemas híbridos SC/FM, onde o material supercondutor é o nióbio (Nb), os materiais ferromagnéticos são cobalto (Co), e níquel-ferro (NiFe, também chamado de Permalloy).

Este capítulo está separado em três partes, a primeira parte é um estudo estrutural dos sistemas híbridos das multicamadas SC/FM, partindo do uso da técnica de difração de raios-X em alto ângulo e uma análise em baixo ângulo para estudar a rugosidade das interfaces nas multicamadas. A segunda parte é uma análise das medidas de transporte elétrico, para definir os valores da temperatura de transição (T_C) para cada sistema. A terceira parte mostra a caracterização magnética, usando o sistema PPMS-VSM.

Além da caracterização estrutural e magnética dos sistemas híbridos deste trabalho, também é realizada uma pequena análise de transporte para confirmar a coexistência supercondutividade / ferromagnetismo, observando como um campo magnético externo afeta a transição supercondutora dos sistemas estudados, e mostrando a possibilidade do surgimento espontâneo dos vórtices magnéticos. A realização de medidas magnéticas e de transporte foram prejudicadas pelos problemas de produção de hélio (He) líquido ocorridos durante a realização desta tese.

5.1 Análise Estrutural

Para os resultados da análise estrutural, foram realizadas medidas de difração de raios-X de alto e baixo ângulo no Laboratório de Nacional de Luz Síncroton; as medidas de alto ângulo são mostradas nas figuras 5.1, 5.2, onde a difração de cada amostra é apresentado em conjunto para diferenciar os padrões de difração pela espessura do material ferromagnético.

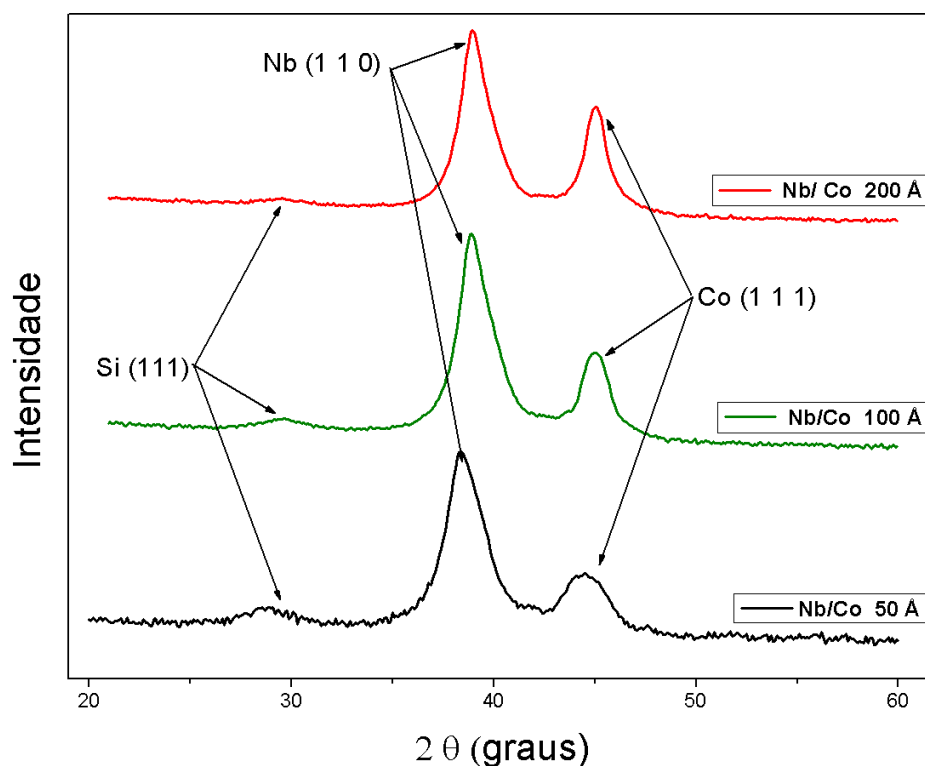


Figura 5.1: Difratograma de raios - X dos sistemas Nb/Co_d , com espessura da camada FM (d) indicada para cada amostra.

Para o sistema $Si/[Nb(500 \text{ \AA})/Co(d)]_5/Nb(500 \text{ \AA})/Au(50 \text{ \AA})$, onde d tem valores de 50 Å, 100 Å, e 200 Å, apresentam três picos de Bragg (Figura 5.1). O pico menos intenso corresponde ao substrato de silício, Si(111), presente na maioria das amostras. O pico maior corresponde ao nióbio, Nb(110), que apresenta uma fase *bcc*. O segundo pico maior corresponde ao cobalto de fase *fcc*, Co(111), o qual pode aumentar ou diminuir dependendo da espessura deste na amostra.

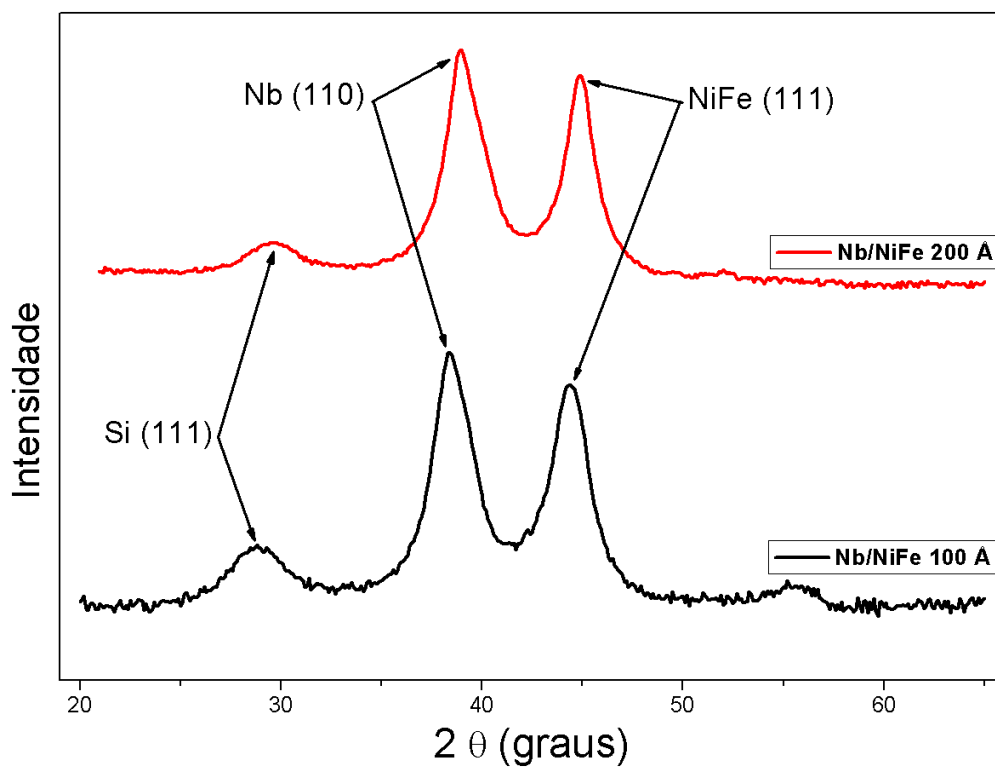


Figura 5.2: Difratoogramas de raios-X dos sistemas de multicamadas Nb/NiFe_d, com espessura da camada FM (*d*) indicada para cada amostra.

Partindo das medidas de baixo ângulo, se determina o valor final das espessuras das camadas depositadas, além de ser possível definir a rugosidade das camadas nas interfaces dos sistemas. Estes valores são obtidos usando o programa WINGIXA, o qual reproduz o difratograma de raios-X o mais exato possível, sendo limitado pela eventual saturação dos filtros no sistema focalizador do síncrotron.

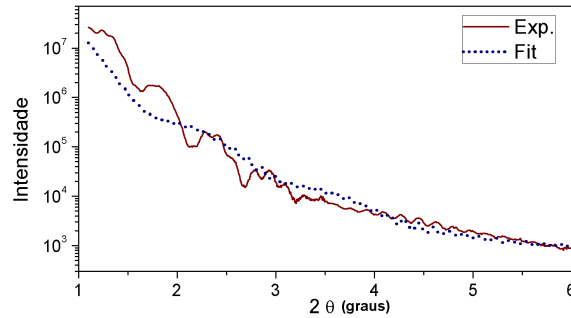


Figura 5.3: Comparação raios-X de baixo ângulo do sistema híbrido $Si/[Nb(500\text{\AA})/Co(50\text{\AA})]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$ (Exp) com um ajuste (*fit*) feito por WINGIXA.

Embora seja possível obter valores aproximados de espessura e rugosidade de cada camada (tabela 5.1), os valores de espessura são definidos pelo valor médio em cada material nos sistemas de multicamadas usados neste trabalho. Pelo nível de rugosidade de cada camada é possível saber se há interdifusão nas interfaces SC/FM. Isso pode ser devido ao fato de que o material ferromagnético forma ilhas de diferentes tamanhos quando é depositado sobre a camada supercondutora, dando lugar à formação de interfaces rugosas.

SISTEMA	d		Rugosidade	
	SC[Å]	FM [Å]	SC[Å]	FM [Å]
Nb/Co (50Å)	496	49	10	7
Nb/Co (100Å)	493	109	7	6
Nb/Co (200Å)	506	202	8	7
Nb/NiFe (100Å)	500	101	6	9
Nb/NiFe (200Å)	500	212	8	11

Tabela 5.1: Tabela de espessuras (d) e rugosidades das camadas dos sistemas SC/FM, obtidas por difração de baixo ângulo, e calculadas pelo programa WINGIXA.

Como é observado na tabela 5.1, as rugosidades de cada material (SC e FM) têm valores próximos entre eles, o que pode mostrar uma possível interdifusão de materiais em cada sistema. Além disso, no sistema de menor espessura (Nb/Co com $d \approx 50\text{\AA}$) se observa que a rugosidade do material

FM (7,416 Å) é consideravelmente grande com respeito ao valor da espessura (49,858), portanto podemos dizer que, com a deposição de cada camada FM formou ilhas sobre as camadas SC. Esta formação diminui com o aumento da espessura da camada FM, produzindo uma deposição mais homogênea.

5.2 Propriedades de Transporte

As medidas da resistência em função da temperatura dos sistemas das multicamadas Nb/Co e Nb/NiFe foram realizadas por meio do método de quatro pontas, cada amostra apresenta uma transição supercondutora definida pelo valor da temperatura de transição (T_C).

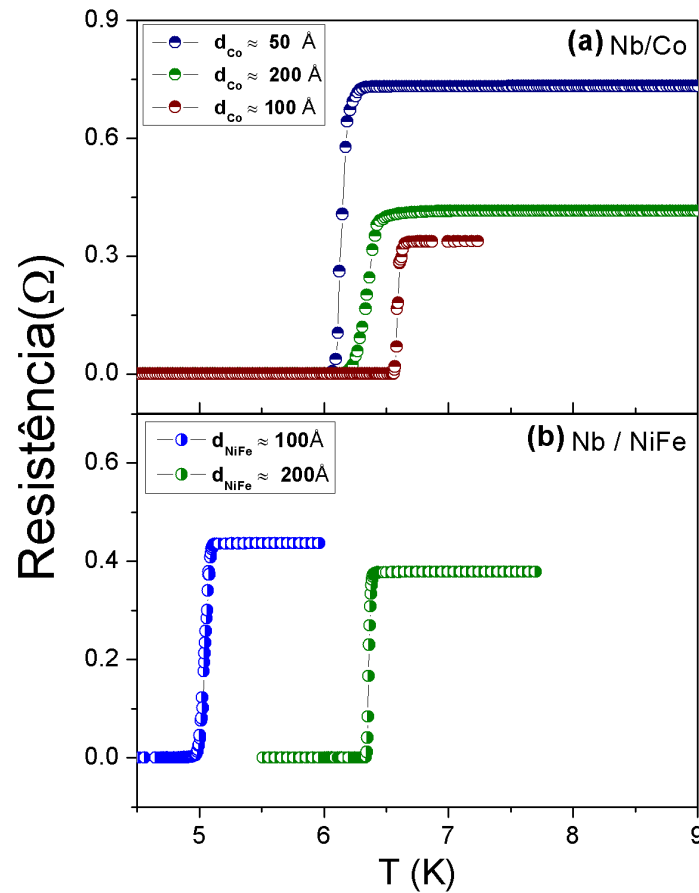


Figura 5.4: Curva de Resistência *vs* Temperatura das amostras de multicamadas: (a) Nb/Co, e (b) Nb/NiFe.

A temperatura crítica (T_C) das camadas de Nb apresentam valores diferentes do Nb puro (9.5 K)[40], onde os valores da temperatura crítica diminuem significativamente, pois o aumento da espessura da camada FM influencia nos valores da T_C . Na figura 5.4(a), observamos que T_C aumenta com a espessura, isso pode ser devido ao efeito de proximidade.

Com o sistema de multicamadas Nb/NiFe (figura 5.4(b)), observamos também a influência da espessura na T_C , sendo que, com o NiFe a queda na temperatura é mais acentuada, e com o aumento da espessura das camadas FM ocorre um aumento de T_C . Na tabela 5.2, estão os valores da espessura na camada FM e a respectiva T_C para cada amostra. Comparando os dois tipos de sistema, o NiFe apresenta valores menores de temperaturas críticas que o sistema de Co, possivelmente devido a natureza ferromagnética de cada material.

SISTEMA	$d_{FM}[\text{Å}]$	$T_C[\text{K}]$
Nb/Co	50	6,34
Nb/Co	100	6,51
Nb/Co	200	6,68
Nb/NiFe	100	5,11
Nb/NiFe	200	6,4

Tabela 5.2: Relação das espessuras com as temperaturas críticas.

Como mostra a figura 5.5, na presença de um campo externo, T_C também sofre uma queda em seu valor, isso porque a resposta magnética das camadas FM depende da intensidade do campo externo, assim, a supercondutividade diminui devido ao efeito de proximidade entre as camadas SC e as FM.

Para o caso da amostra do sistema Nb/NiFe com $d = 100 \text{ Å}$ o valor de T_C com um campo magnético externo de 1,0 T é 4,7 K, sendo menor que o valor de T_C sem campo (figura 5.5(a)). Com o mesmo valor de campo, T_C da amostra com espessura de $d = 200 \text{ Å}$ também sofre uma queda (figura 5.5(b)), esta é mais acentuada que na amostra com espessura de $d = 100 \text{ Å}$ (5,7 K).

Como as medidas de transporte podem dar um registro da presença de vórtices magnéticos; partindo do fato de que elas apresentam uma mudança na transição pelo estado supercondutor, é possível encontrar um valor de temperatura (T) que mostra uma deformação na transição, a qual indica que existe uma geração espontânea de vórtices magnéticos neste sistema na presença de um campo magnético externo[5]. Esta mudança é mais evidente na amostra de $d = 100 \text{ Å}$, para a amostra de $d = 200 \text{ Å}$ a mudança na curva não é tão evidente, portanto a geração de vórtices magnéticos é baixa.

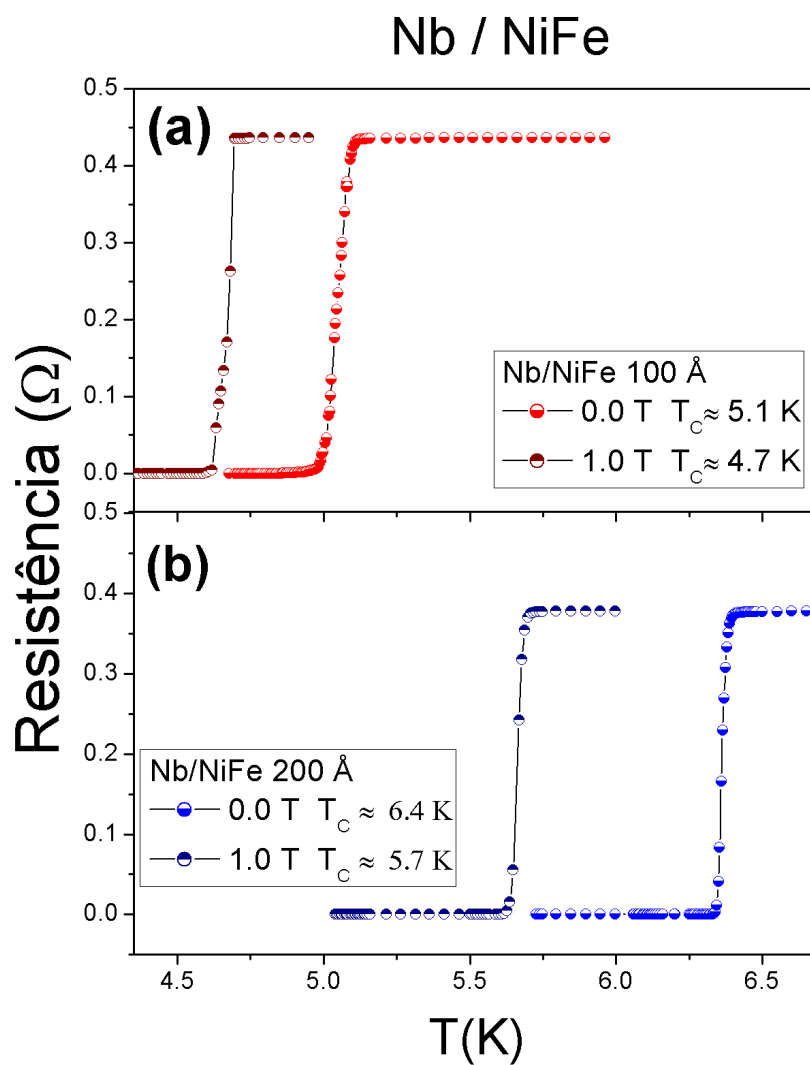


Figura 5.5: Medidas de resistência em função da temperatura sem campo e com campo magnético (1.0 T) para as amostras dos sistemas Nb/NiFe. **(a)** Com espessura $d = 100$ Å. **(b)** Com espessura $d = 200$ Å.

5.3 Análise Magnética

Geralmente cada elemento do sistema SC/FM apresenta uma resposta magnética própria. Por exemplo, os supercondutores apresentam uma resposta cuja intensidade depende da temperatura. Idealmente, eles podem mostrar curvas de magnetização reversíveis ($M(H)$), como as apresentadas na figura 2.3 da seção 2.1. É interessante perceber que, um supercondutor de tipo II ideal pode ser pouco útil para uma grande quantidade de aplicações práticas. Nestes, as supercorrentes não conseguem fluir acima de H_{C1} . Para este caso, mudamos o material de tal maneira que a curva de magnetização seja irreversível (curva de histerese). Isso poder ser feito introduzindo defeitos, usualmente através de uma boa escolha das diferentes condições de preparação. Estes defeitos fixam as linhas de campo, assim, restringindo seus movimentos. Este é o movimento que limita a densidade de corrente acima do H_{C1} .

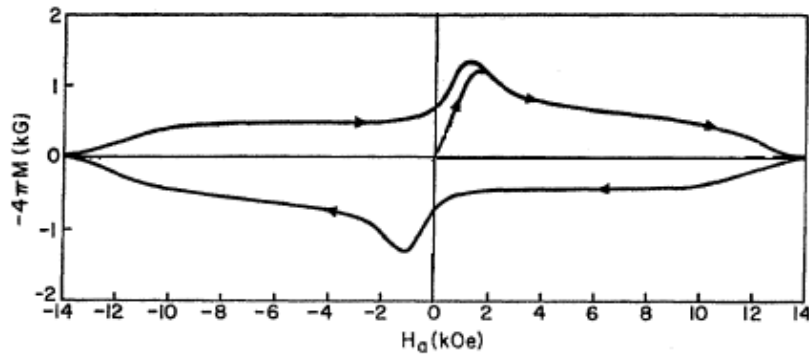


Figura 5.6: Curva de magnetização de uma liga metálica de NbTi para uma temperatura de 4.2 K.[41]

Quando o supercondutor é modificado pelos defeitos, a magnetização $M(H)$ muda de uma curva reversível (figura 2.3) para uma curva irreversível (Figura 5.6), mostrando uma pequena evidência da presença de H_{C1} na curva inicial de magnetização. Agora é possível que as supercorrentes possam fluir acima de H_{C1} , e a quantidade de supercorrente que flui é determinada pelo valor da magnetização irreversível. Assim, temos a curva de histerese típica dos materiais supercondutores.

Por outro lado, a resposta magnética dos materiais ferromagnéticos apresentam uma forma típica de histerese magnética, mas certas mudanças na forma ou na largura da curva dependem da estrutura da amostra. Para certos casos, a curva de histerese muda de posição. No exemplo da figura 5.7 temos duas amostras magnéticas, as quais mostram uma curva de histerese típica e onde é possível observar que, ao incluir uma camada de material não magnético entre duas camadas magnéticas, a curva de histerese mostra uma mudança na largura [42], ou um deslocamento (*Exchange Bias*). Estas mudanças podem ser quantificadas a partir de parâmetros como o campo coercitivo, o campo de *Exchange Bias* e a magnetização remanente.

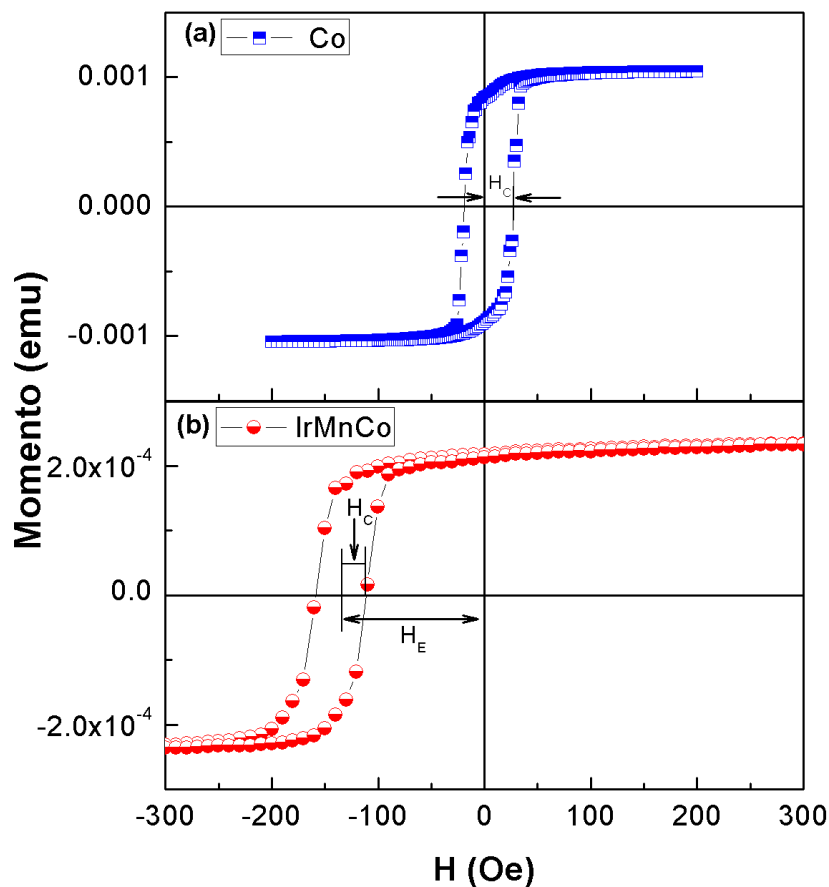


Figura 5.7: Resposta magnética das amostras: (a) Co puro e (b) a multicamada de IrMnCo, onde poder ser observado valores como o campo coercitivo H_c e o campo de *Exchange Bias* H_E .

Partindo das curvas de histerese desses dois tipos de materiais (SC e FM), podemos comparar a resposta de cada material com a resposta magnética das amostras medidas neste trabalho.

Os resultados obtidos no sistema de medida VSM-PPMS, são apresentados na seguinte coleção de figuras, onde para cada amostra foi realizada uma grande quantidade de medidas de magnetização a diferentes valores de temperatura para observar sua evolução. Para cada amostra temos um detalhe onde é possível observar seu comportamento em cada temperatura de medida.

Nos resultados obtidos nesta tese não foram observados campo coercivo e efeito de *Exchange Bias*. A forma dos gráficos apresenta uma mistura entre a curva de histerese ferromagnética e a curva de histerese supercondutora; quando a temperatura aumenta, o estado supercondutor vai diminuindo até o ponto que somente se observa a resposta ferromagnética no sistema. Cada sistema tem camadas ferromagnéticas (FM) com espessuras distintas, com o valor da espessura das camadas supercondutoras (SC) mantendo constante; tanto T_c quanto a forma das curvas diferem dependendo da espessura da camada FM e o tipo de material ferromagnético usado.

5.3.1 Sistema Nb/Co

No primeiro caso, o sistema Nb/Co (figuras 5.8, 5.10, 5.12) têm uma resposta ferromagnética típica em temperaturas mais altas. Quando reduzimos a temperatura do sistema abaixo da temperatura crítica de transição T_c , a resposta supercondutora se manifesta juntamente com a resposta ferromagnética.

É possível perceber que o comportamento magnético do Co é afetado pelas camadas SC de Nb (figuras 5.8, 5.10, 5.12), quando o sistema está em temperaturas abaixo de T_c . Além disso, a resposta supercondutora também é afetada pela espessura das camadas FM de Co, onde aparecem mudanças de T_c em cada sistema. Comparamos os valores obtidos de T_c com os valores de temperatura obtidos na seção anterior (tabela 5.3), onde o valor de T_c é menor.

$d_{Co}[\text{Å}]$	$T_c[\text{K}] (R(T))$	$T_c [\text{K}] (M(H))$
50	6,34	5,5
100	6,51	6,2
200	6,68	6,4

Tabela 5.3: Comparação entre temperaturas críticas, obtidas pelas medidas de transporte e de magnetização.

Nos detalhes dos gráficos de cada amostra foi indicado o sentido de cada trajetória da curva de histerese abaixo de T_C com setas da cor (e tipo) diferentes. Onde a seta sólida (vermelha) indica a trajetória da curva virgem na temperatura de 2 K (figuras 5.9(a), 5.11(a) e 5.13(a)), a seta tracejada (verde) mostra a trajetória da resposta magnética do material quando o valor do campo magnético sobe (trajetória positiva), e a seta tracejada-pontilhada (azul) indica a resposta magnética do material quando o valor do campo magnético decai (trajetória negativa) na curva de histerese.

As medidas de cada amostra abaixo da T_C mostram um ponto de união nas trajetórias. Este ponto está relacionado com a irreversibilidade magnética (H_{irr}), onde há uma transição entre as fases sólida e líquida dos vórtices magnéticos. Partindo deste ponto até o ponto de maior valor de campo magnético, as trajetórias permanecem juntas, descrevendo um caminho curvo até um valor de campo, onde a trajetória torna-se uma reta. Portanto, a resposta magnética é de saturação nesta zona. Para estes sistemas, o ponto onde se inicia a saturação está relacionado com o campo crítico H_{C2} . Assim, tanto as curvas de histerese como o ponto de união são levados em conta para a análise das medidas abaixo da T_C .

Nb / Co $d_{Co} = 50 \text{ \AA}$ $T_C \approx 5,5 \text{ K}$

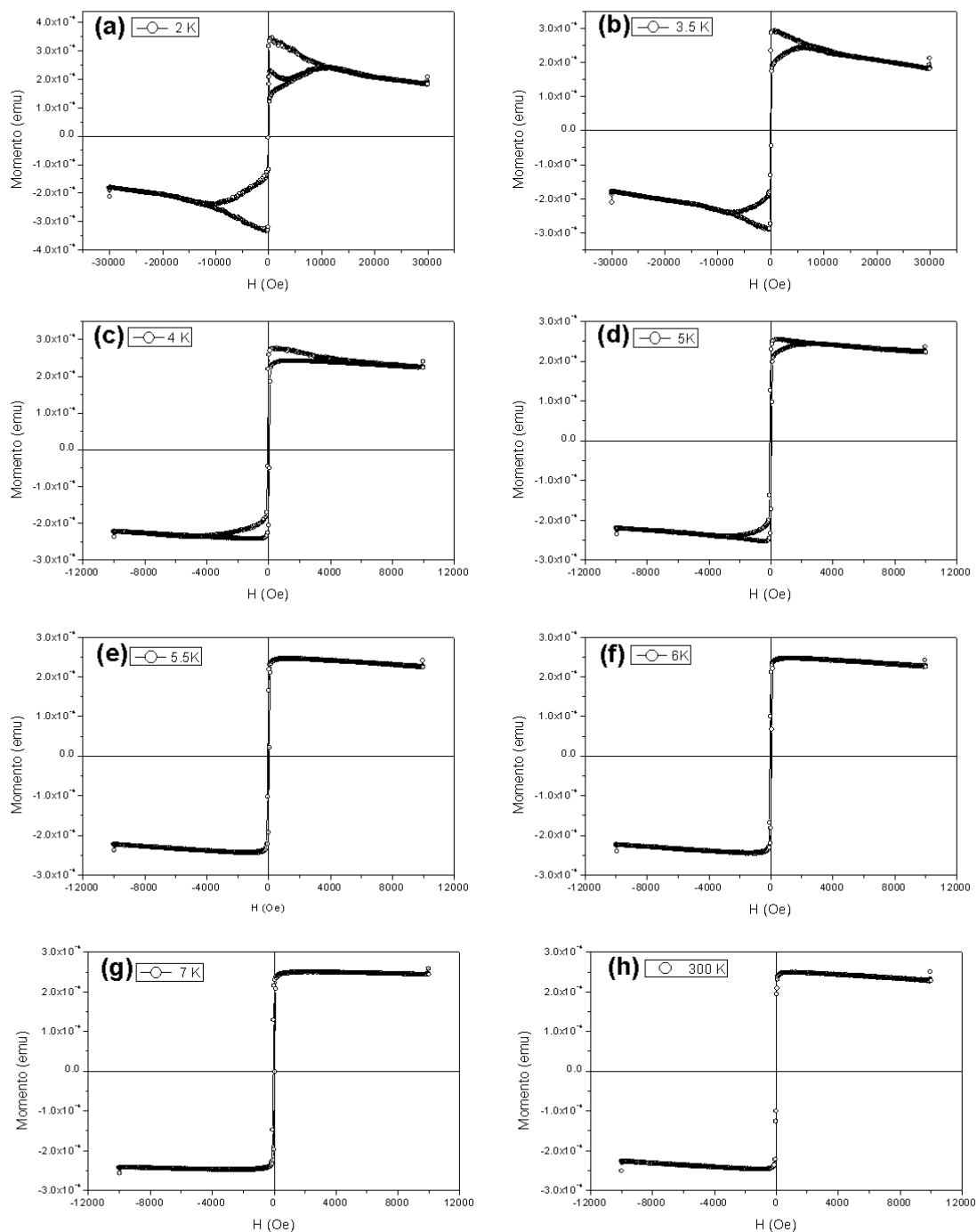


Figura 5.8: Curvas de magnetização da amostra $Si/[Nb(500\text{\AA})/Co(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, onde $d = 50 \text{ \AA}$.

Nb / Co $d_{Co} = 50 \text{ \AA}$ $T_C \approx 5,5 \text{ K}$

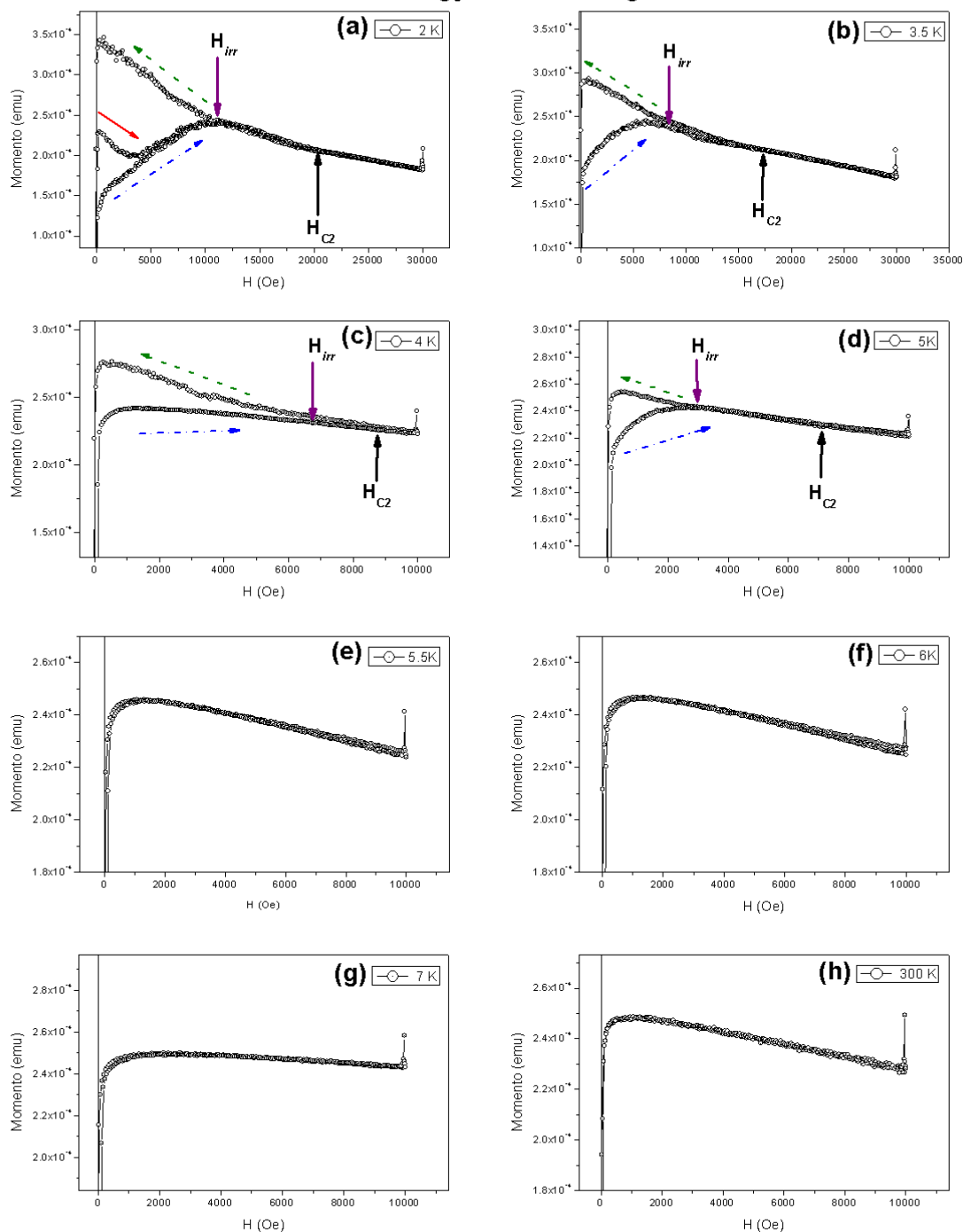


Figura 5.9: Detalhe das curvas de magnetização da amostra $Si/[Nb(500\text{\AA})/Co(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, onde $d = 50 \text{ \AA}$, onde (a) 2 K, (b) 4 K e (c) 7 K, onde são indicados H_{irr} e H_{C2} .

Nb / Co $d_{\text{Co}} = 100\text{\AA}$ $T_C \approx 6,2\text{ K}$

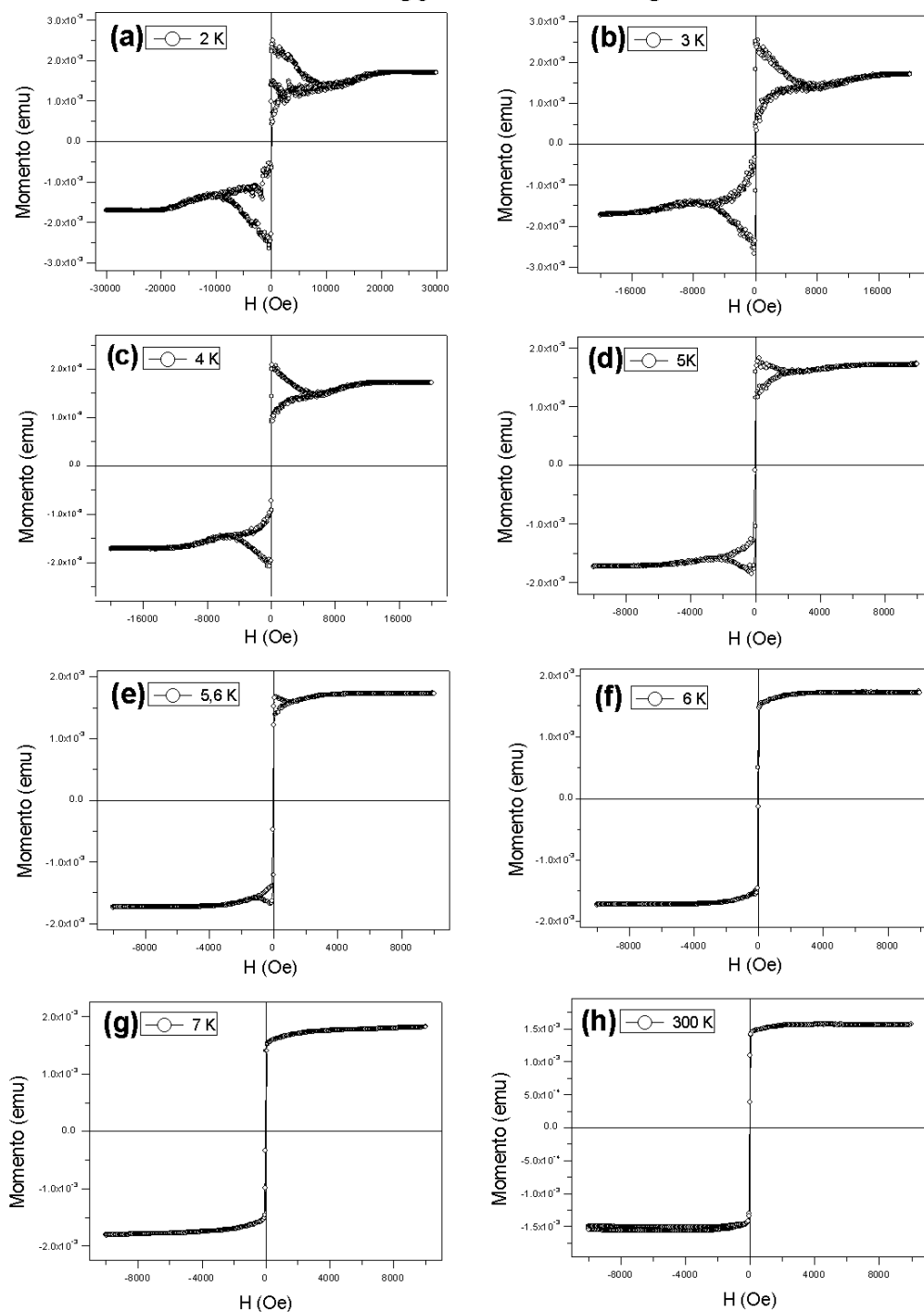


Figura 5.10: Curvas de magnetização da amostra $\text{Si}/[\text{Nb}(500\text{\AA})/\text{Co}(d)]_5/\text{Nb}(500\text{\AA})/\text{Ag}(50\text{\AA})$, onde $d = 100\text{\AA}$.

Nb / Co $d_{Co} = 100 \text{ \AA}$ $T_C \approx 6,2 \text{ K}$

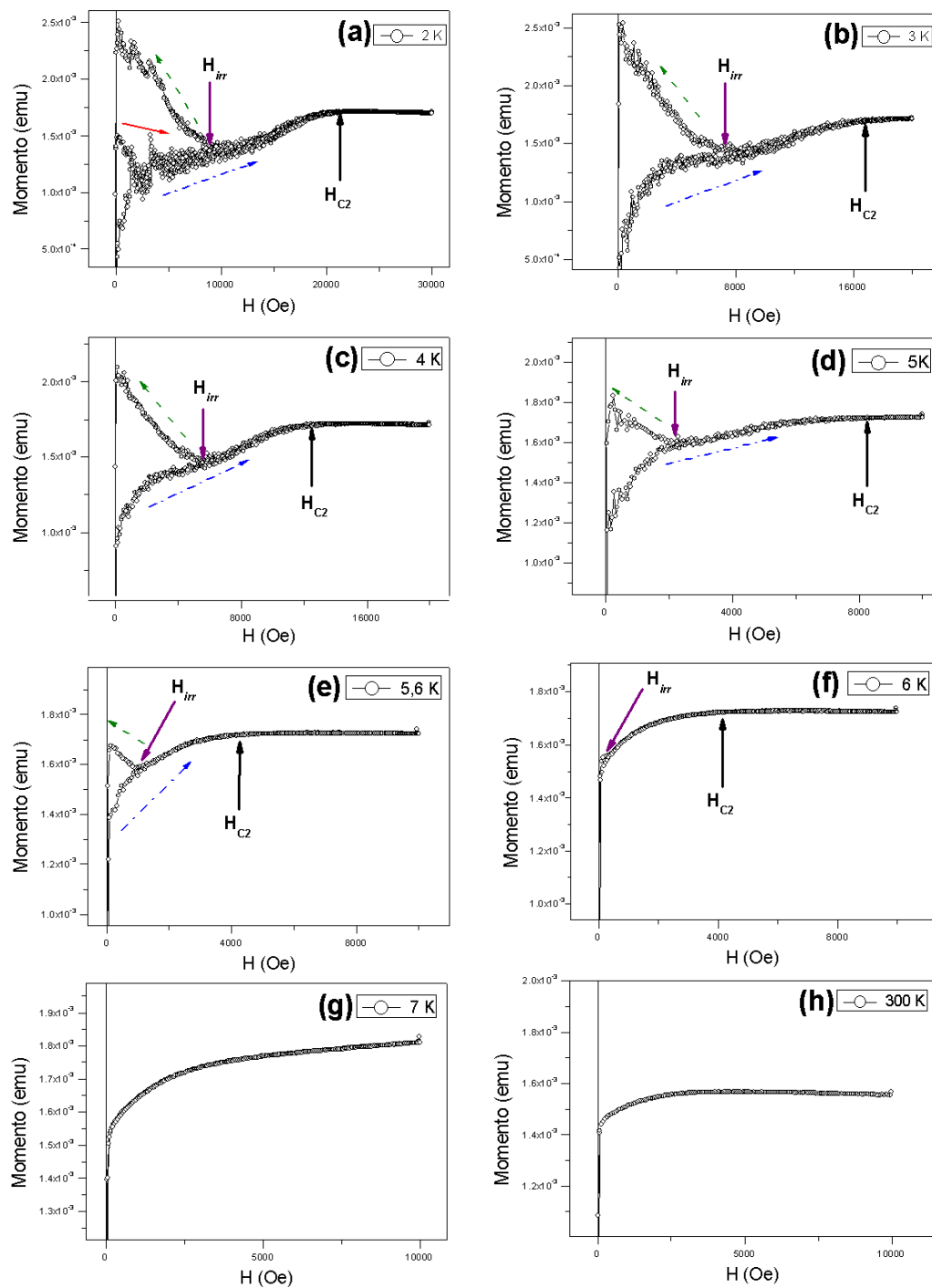


Figura 5.11: Detalhe das curvas de magnetização da amostra $Si/[Nb(500\text{\AA})/Co(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, onde $d = 100 \text{ \AA}$, onde (a) 2 K, (b) 4 K e (c) 7 K, onde são indicados H_{irr} e H_{C2} .

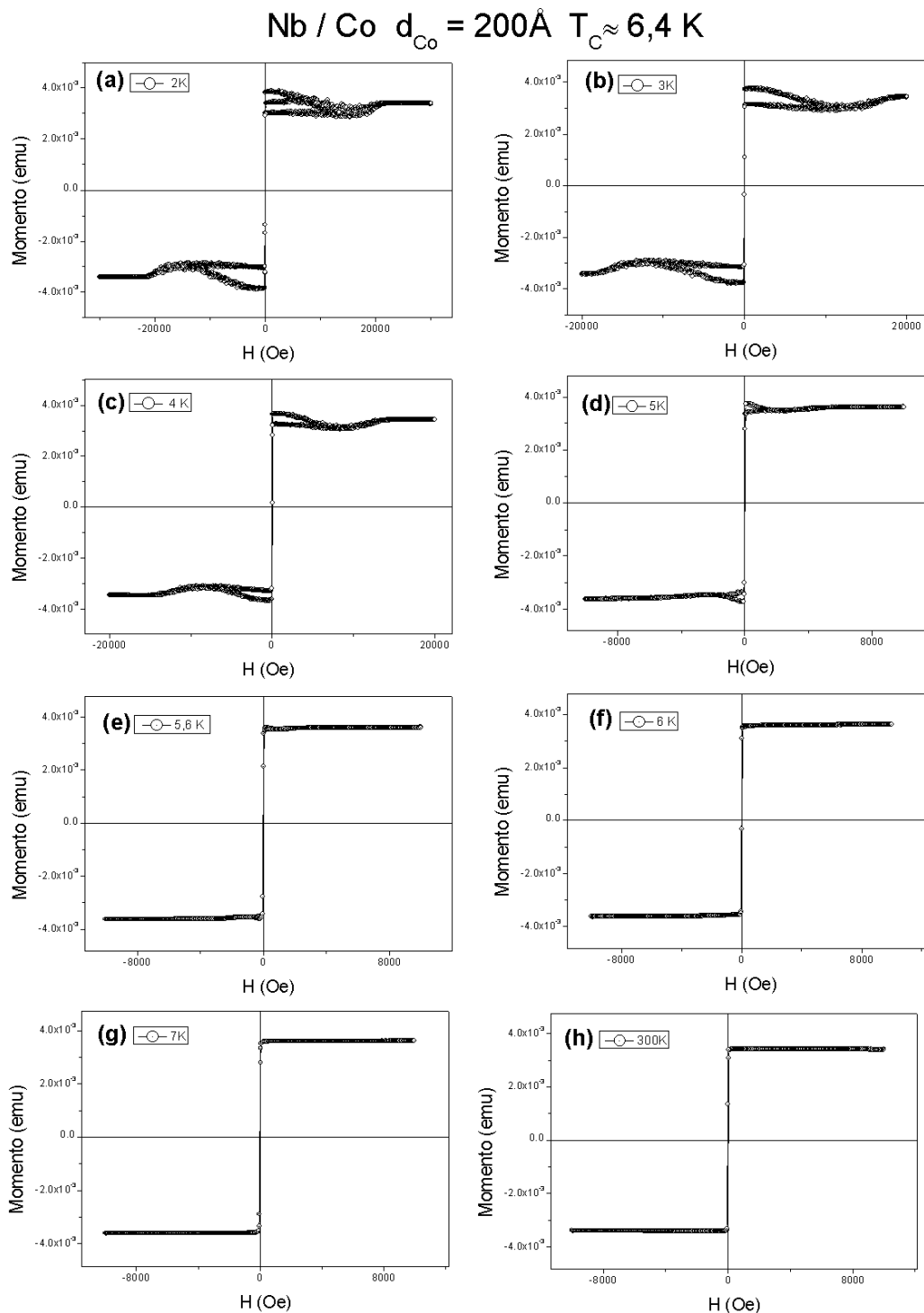


Figura 5.12: Curvas de magnetização da amostra $Si/[Nb(500\text{\AA})/Co(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, onde $d = 200\text{ \AA}$.

Nb / Co $d_{Co} = 200\text{\AA}$ $T_C \approx 6,4\text{ K}$

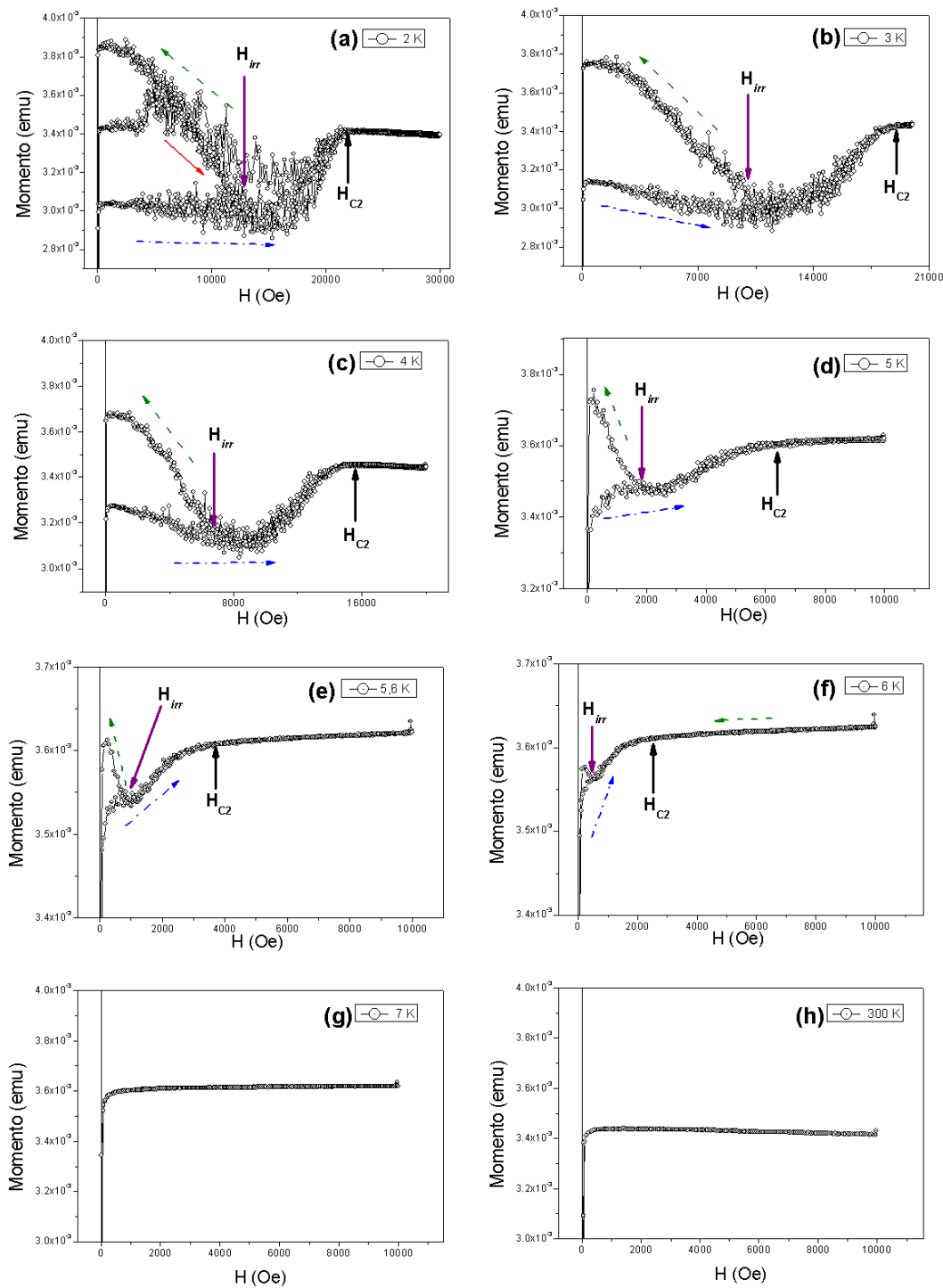


Figura 5.13: Detalhe das curvas de magnetização da amostra $Si/[Nb(500\text{\AA})/Co(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, onde $d = 200\text{\AA}$, onde (a) 2 K, (b) 4 K e (c) 7 K, onde são indicados H_{irr} e H_{C2} .

Para a amostra com camadas FM de espessura $d = 50 \text{ \AA}$ (figura 5.14), a curva na zona de saturação tende a decrescer, apresentando uma inclinação negativa, além disso, em $T = 2 \text{ K}$ a curva de magnetização inicial (curva do material virgem ou curva virgem) mostra-se acima da curva de magnetização negativa. A magnetização de saturação apresenta valores menores que os valores de magnetismo remanente (ou de campo zero), em temperaturas abaixo da T_C . Quando a temperatura aumenta, o valor de magnetismo remanente na trajetória positiva diminui, junto com o aumento do valor do magnetismo remanente da trajetória negativa, mostrando assim, que a contribuição supercondutora é cada vez menor, até o ponto que desaparece acima de T_C . Este tipo de mudança é devido à interação da resposta magnética (pelas camadas FM) com a resposta supercondutora; enquanto o estado supercondutor diminui, a resposta ferromagnética mantém-se em todo o intervalo da temperatura.

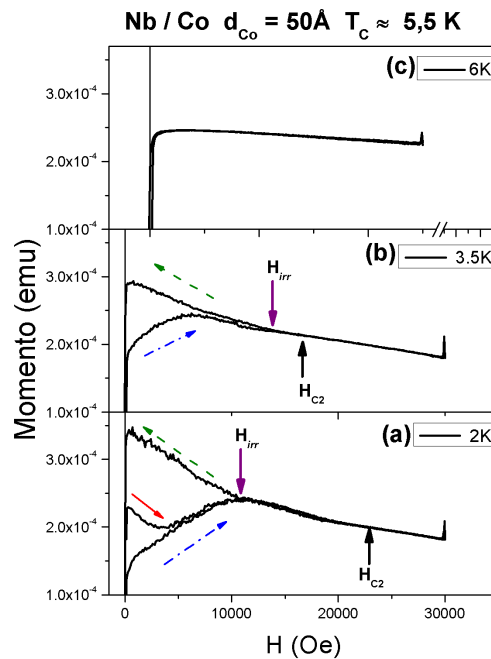


Figura 5.14: Comparação de três temperaturas da amostra Nb/Co com espessura $d = 50 \text{ \AA}$. As linhas que cortam o eixo de campo magnético na temperatura 6 K, indicam uma diferença de escala entre esta temperatura com a medida de 2 K. As setas mostram o sentido da curva de histerese, desde a verde (tracejada) até azul (tracejada-pontilhada), a seta vermelha(sólida) mostra a direção da curva virgem na medida de 2 K, onde (a) 2 K, (b) 4 K e (c) 7 K, onde são indicados H_{irr} e H_{C2} .

Para as amostras com camadas magnéticas maiores ($d = 100\text{\AA}$ e $d = 200\text{\AA}$), a resposta magnética é quase idêntica ao sistema anterior ($d = 50\text{\AA}$), mas a magnetização de saturação não é decrescente, na verdade, a saturação se mantém em um valor aproximadamente constante durante a mudança da temperatura nos sistemas, este valor é próprio da resposta ferromagnética, já que o sinal é mais forte para espessuras maiores. Embora, a supercondutividade ainda coexiste com o magnetismo, fazendo com que a curva de magnetização seja modificada para temperaturas abaixo de T_C (figura 5.15). Além disso, em temperaturas muito baixas (2K), a curva de histerese mostra variações em seu percurso (saltos ou oscilações), que vão diminuindo enquanto a temperatura no sistema aumenta (figuras 5.11 e 5.13); isso mostra que o processo de magnetização não é contínuo. Este efeito pode ser causado pela interação na interface SC/FM, o que poderia gerar uma mudança da disposição dos spins nos elétrons dos pares de Cooper (mudança de estado 0 a π), então esta mudança poderia ser induzida de forma não contínua. Esse efeito é mais evidente no sistema com camadas FM de espessura $d = 200\text{\AA}$, possivelmente por uma maior presença de momentos magnéticos no material ferromagnético.

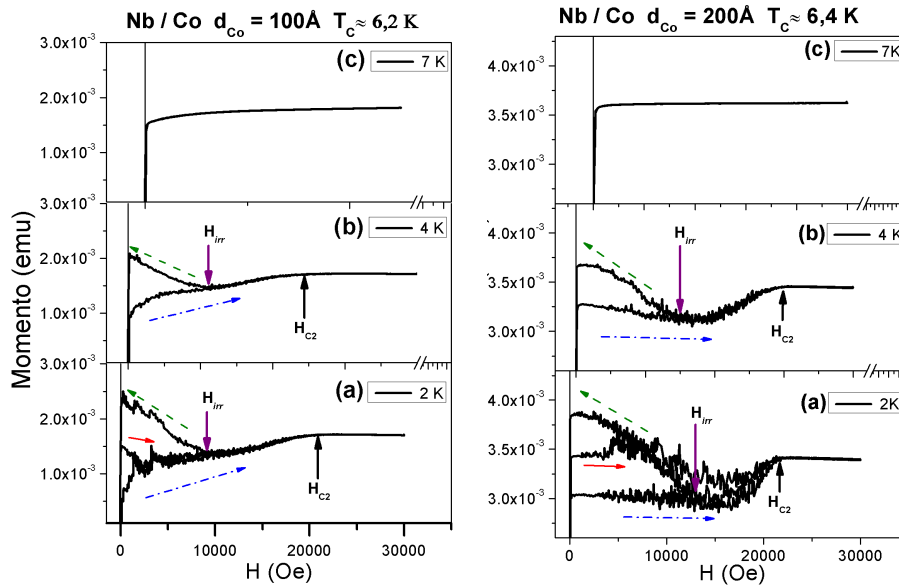


Figura 5.15: Comparação entre temperaturas das amostras Nb/Co com espessuras $d = 100\text{\AA}$ e $d = 200\text{\AA}$, para (a) 2K , (b) 4K e (c) 7K , onde são indicados H_{irr} e H_{C2} .

Nos sistemas de multicamadas de Nb/Co, as medidas de magnetização abaixo da T_C mostram que as trajetórias da curva de histerese (tanto a curva de magnetização positiva, que fica na parte superior, como a curva de magnetização negativa, na parte inferior) ficam unidas para um certo valor de campo magnético e continuam assim ao longo da saturação. Tomando os valores do campo magnético, onde as trajetórias começam a ficar juntas (H_{irr}), para valores de temperatura abaixo de T_C , plotamos o comportamento do campo em função da temperatura $H(T)$, como é apresentado na figura 5.16. Para estes tipos de sistemas, este ponto indica uma mudança no comportamento dos vórtices magnéticos gerados espontaneamente durante o estado superconductor, ou seja, quando a resposta supercondutora está presente nos sistemas híbridos. Isso mostra que, para certos valores de campo abaixo do ponto de “irreversibilidade”, os vórtices magnéticos estão fixos no sistema, sendo possível assumir que apresentam ordenamento sólido, mas pode se apresentar uma orientação aleatória pelas rugosidades das camadas FM. Este estado de vórtices é conhecido como “Vortex Solid” (VS). Para campos com valores maiores que H_{irr} , os vórtices não estão fixos no sistema, portanto eles se deslocam aleatoriamente. Este estado é conhecido como “Vortex Liquid” (VL). A mudança do valor de campo magnético, mostra uma tendência não regular com relação à temperatura, e o menor valor de campo está próximo da temperatura de transição. Estes gráficos mostram a transição de fase entre VS e VL de cada amostra e também os pontos onde começa a saturação. Este ponto ainda define o campo crítico H_{C2} em todas as temperaturas abaixo da T_C , onde representa uma transição entre a fase líquida de vórtices e o estado normal (estado não superconductor). Os diagramas de fases mostram o valor de T_C , valor de H_{irr} e de H_{C2} em função da temperatura. Note que H_{irr} e H_{C2} tendem a juntar-se para valores de T próximos a T_C .

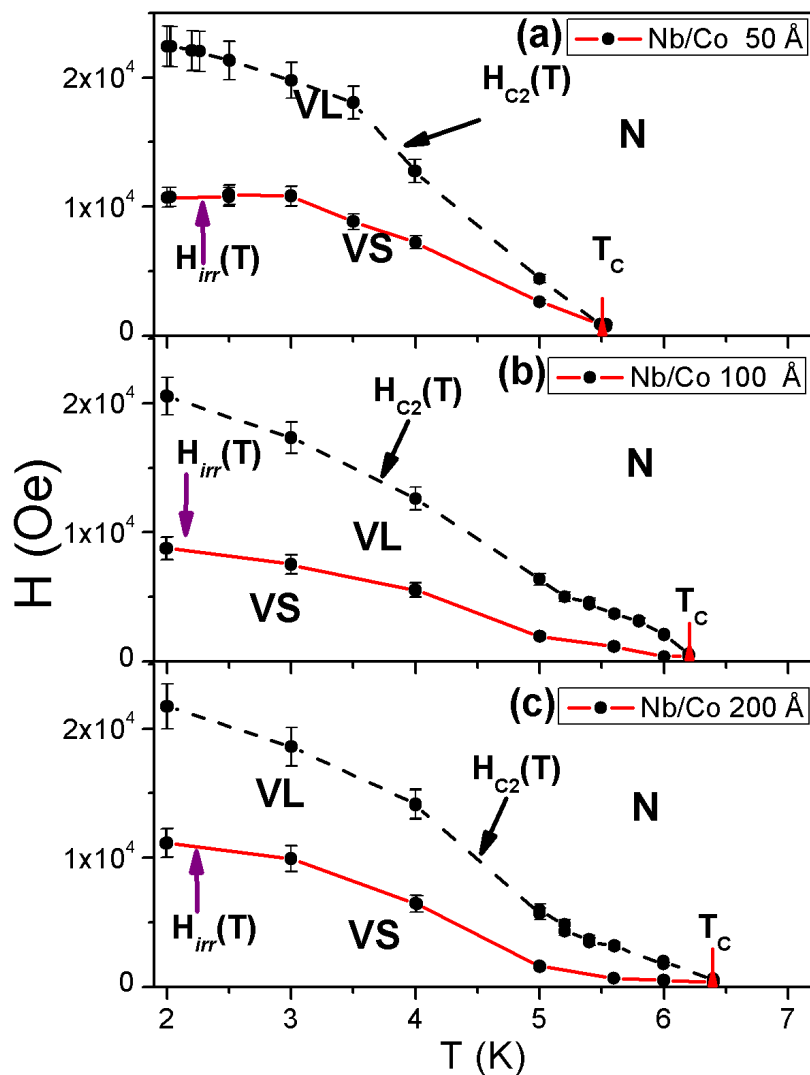


Figura 5.16: Diagrama de fase magnética de sistemas Nb/Co, para as diferentes espessuras, onde as linhas H_{irr} dividem as fases de vórtice sólido (VS) e vórtice líquido (VL), e as linhas de H_{C2} dividem a fase (VS) e o estado normal N. Também são indicados os valores da T_C em cada sistema.

Para estudar somente a resposta SC de cada amostra, vamos usar o seguinte procedimento: subtraindo duas medidas de temperatura diferente ($T_1 - T_2$), é possível excluir a resposta ferromagnética (quando $T_1 < T_C$ e $T_2 > T_C$), e assim, analisarmos somente comportamento da supercondutividade nos sistemas de multicamadas SC/FM (figura 5.17). Nos sistemas antes apresentados observamos que, ao excluir a resposta ferromagnética, as curvas de magnetização resultantes são referentes à resposta supercondutora em presença de um campo magnético externo, mas também apresentam variações no percurso da curva de histerese. Portanto, pode se concluir que estas variações são próprias do estado supercondutor, que é modificado pela presença das camadas FM no sistema híbrido.

Neste sistema (Nb/Co), é observado que a amostra da figura 5.17(a) ($d = 50 \text{ \AA}$) apresenta uma curva de histerese modificada, mostrando saturação em valores de campo magnético próximos a $\pm 1 \text{ T}$ e uma deformação côncava para acima na direção do campo aplicado, e côncava para abaixo na direção oposta do campo aplicado. Esta resposta também mostra variações quase oscilantes (saltos) na trajetória. Mesmo assim, a medida que aumentamos a espessura das camadas FM no sistema (figuras 5.17 (b) e (c)), a resposta supercondutora apresenta uma mudança na deformação da trajetória da curva de histerese, onde a maior variação ocorre na amostra com maior espessura na camada FM (figura 5.17(c)).

Como no caso da amostra de menor espessura da camada FM, as respostas supercondutoras das amostras de $d = 100 \text{ \AA}$ e $d = 200 \text{ \AA}$, apresentam também uma deformação na trajetória da curva de histerese; mas o desvio encontrado na amostra de $d = 100 \text{ \AA}$ (figura 5.17(b)) é menor que na curva da amostra anterior, no entanto, também manifesta saturação. Esta começa em valores menores de campo magnético (aproximadamente a metade) em comparação com a amostra inicial. Para a resposta da amostra com maior espessura na camada FM ($d = 200 \text{ \AA}$), a curva de histerese tem uma deformação côncava para abaixo na direção do campo magnético e para acima na direção oposta do campo (figura 5.17(c)) contrária à mostrada pela amostra inicial ($d = 50 \text{ \AA}$). Além disso, a saturação desta amostra começa em valores de campo menores aos mostrados na amostra de $d = 100 \text{ \AA}$, o qual mostra que, a resposta supercondutora é mais fraca para este valor de espessura. Portanto, se observa que o tamanho da curva de histerese diminui com respeito ao aumento da espessura das camadas FM no sistema. Além disso, pode-se ver que a curva de histerese de cada amostra está deslocada positivamente sobre o eixo do campo magnético, ou seja, que os valores da saturação no campo negativo são menores aos valores de saturação no campo positivo.

Partindo destes resultados é possível observar que, há uma manifestação espontânea de vórtices magnéticos, os quais têm uma transição de fase (VS

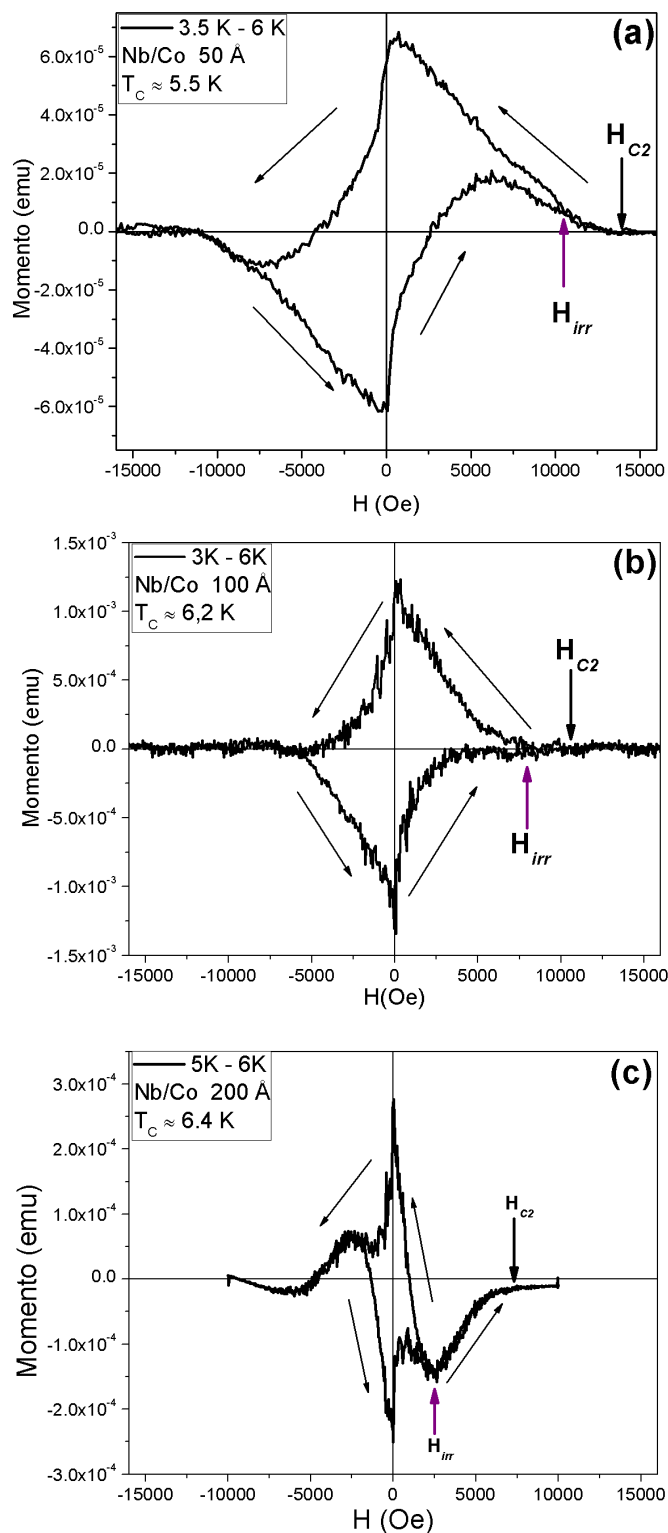


Figura 5.17: Subtração de funções a temperaturas diferentes do sistema $Si/[Nb(500\text{\AA})/Co(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, para valores de : (a) $d = 50$ Å onde $T_1 = 3.5$ K e $T_2 = 6$ K; (b) $d = 100$ Å onde $T_1 = 3$ K e $T_2 = 6$ K; (c) e $d = 200$ Å onde $T_1 = 5$ K e $T_2 = 6$ K. As setas indicam o sentido da trajetória da curva de histerese, também são indicados H_{irr} e H_{C2} .

a VL e vice-versa) que relaciona-se com o valor do campo magnético, onde começa a saturação magnética de cada amostra. Comparando os gráficos, o deslocamento que deforma a curva de histerese parece trocar de orientação quando a espessura das amostras aumenta, mostrando uma aparente mudança na orientação dos vórtices magnéticos.

5.3.2 Sistema Nb/NiFe

A próxima série de multicamadas são preparadas com permalloy (*NiFe*); formando sistemas híbridos Nb/NiFe. Estas amostras apresentam uma resposta semelhante ao caso anterior (figuras 5.18, 5.20), mas no caso do *NiFe*, a mudança do comportamento ferromagnético pelas camadas SC parece ser diferente, apesar da temperatura crítica de transição supercondutora T_C encontra-se quase no mesmo intervalo. Como no caso do sistema Nb/Co, também foi indicado com setas (de diferentes cores e tipos) os sentidos de cada trajetória da curva de histerese abaixo de T_C . Onde a seta sólida (vermelha) indica a trajetória da curva virgem na curva de temperatura 2 K (figuras 5.19(a) e 5.21(a)), a seta tracejada (verde) mostra a trajetória superior (ou positiva), e a seta tracejada-pontilhada (azul) indica a trajetória inferior (ou negativa) da curva de histerese.

As medidas das amostras mostram uma anomalia em todas as temperaturas, esta anomalia está situada na parte central da curva de histerese, no intervalo de campo magnético aproximadamente entre -100 a 100 Oersted, e é melhor observado na amostra de espessura na camada FM $d = 200$ Å. Este tipo de anomalia pode ser visto com detalhe na figura 5.21, onde é observado na trajetória inferior (ou negativa) da curva de histerese. Este comportamento pode ser atribuído ao tipo de material ferromagnético usado no sistema, NiFe (permalloy), onde aparentemente manifesta uma fase de transição no ordenamento magnético da resposta ferromagnética, com menores valores de campo magnético. Comparamos os valores obtidos de T_C com os valores de temperatura das medidas de transporte (tabela 5.4), como no caso do sistema Nb/Co, os valores da T_C também são menores.

$d_{NiFe}[\text{Å}]$	$T_C[\text{K}] (R(T))$	$T_C [\text{K}] (M(H))$
100	5,1	5,2
200	6,4	6,2

Tabela 5.4: Comparação entre temperaturas críticas, obtidas pelas medidas de transporte e de magnetização.

Nb / NiFe $d_{\text{NiFe}} = 100 \text{ \AA}$ $T_C \approx 5,2 \text{ K}$

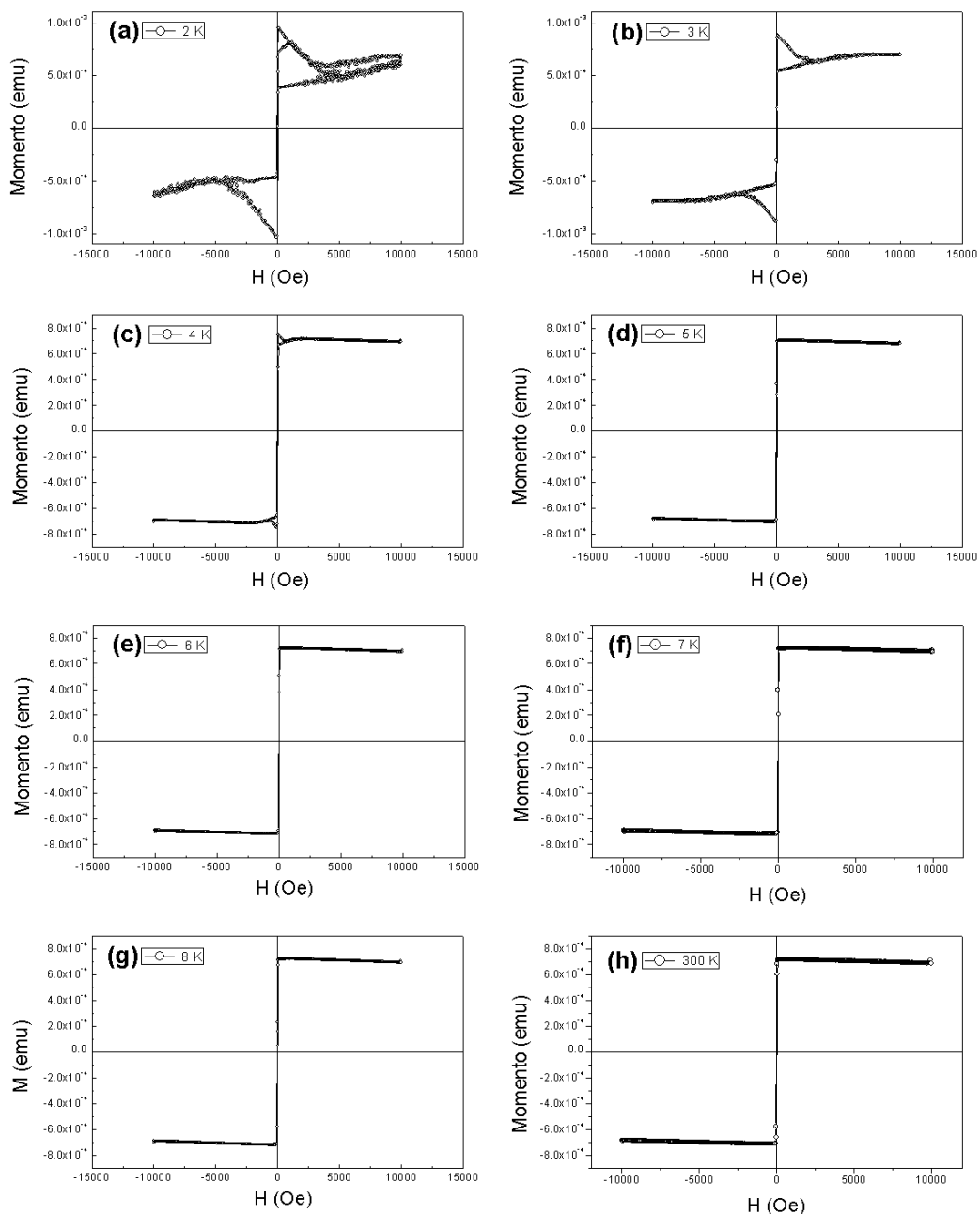


Figura 5.18: Curvas de magnetização da amostra $\text{Si}/[\text{Nb}(500\text{\AA})/\text{NiFe}(d)]_5/\text{Nb}(500\text{\AA})/\text{Ag}(50\text{\AA})$, onde $d = 100 \text{ \AA}$.

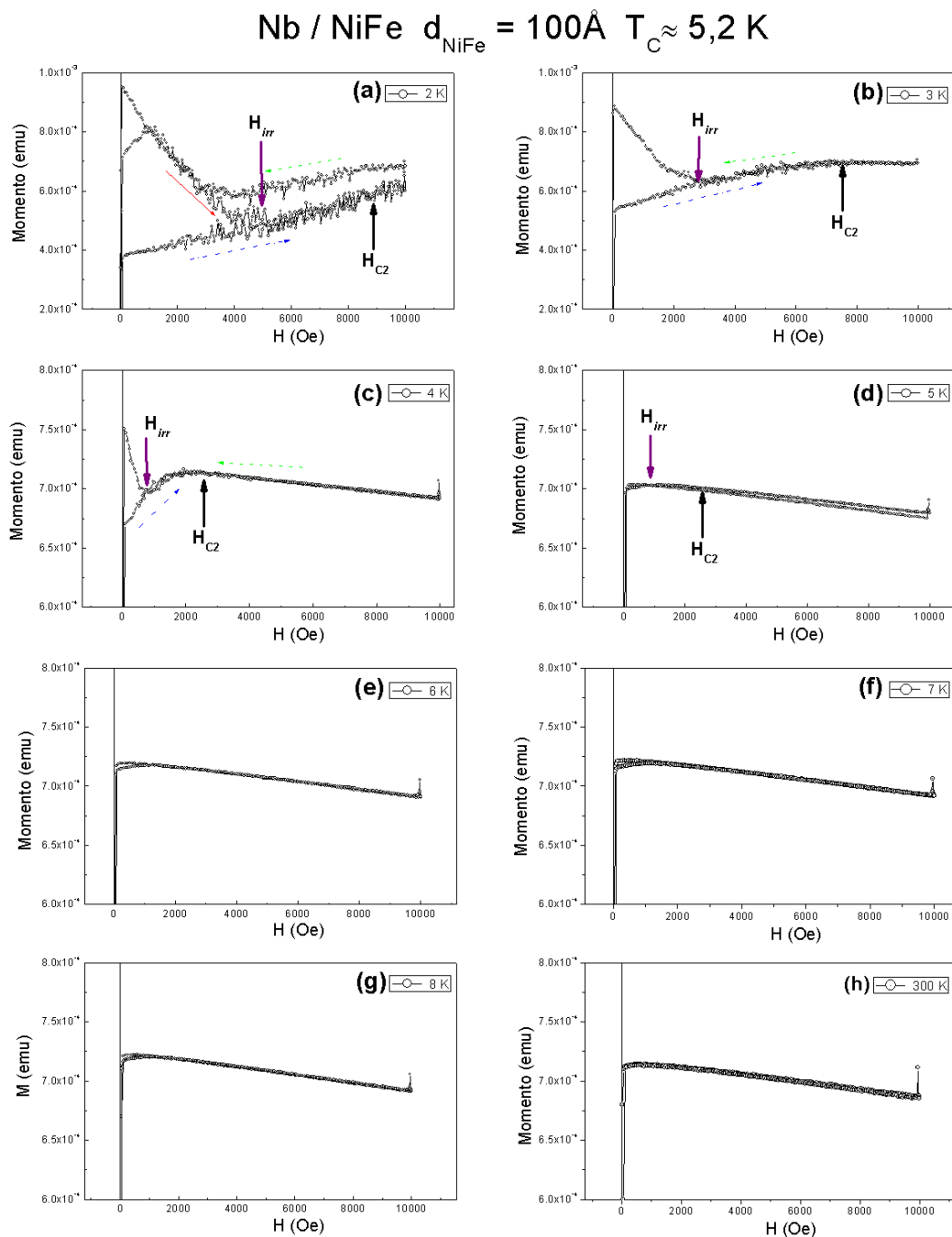


Figura 5.19: Detalhe das curvas de magnetização da amostra $Si/[Nb(500\text{\AA})/NiFe(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, onde $d = 100 \text{ \AA}$, onde são indicados H_{irr} e H_{C2} .

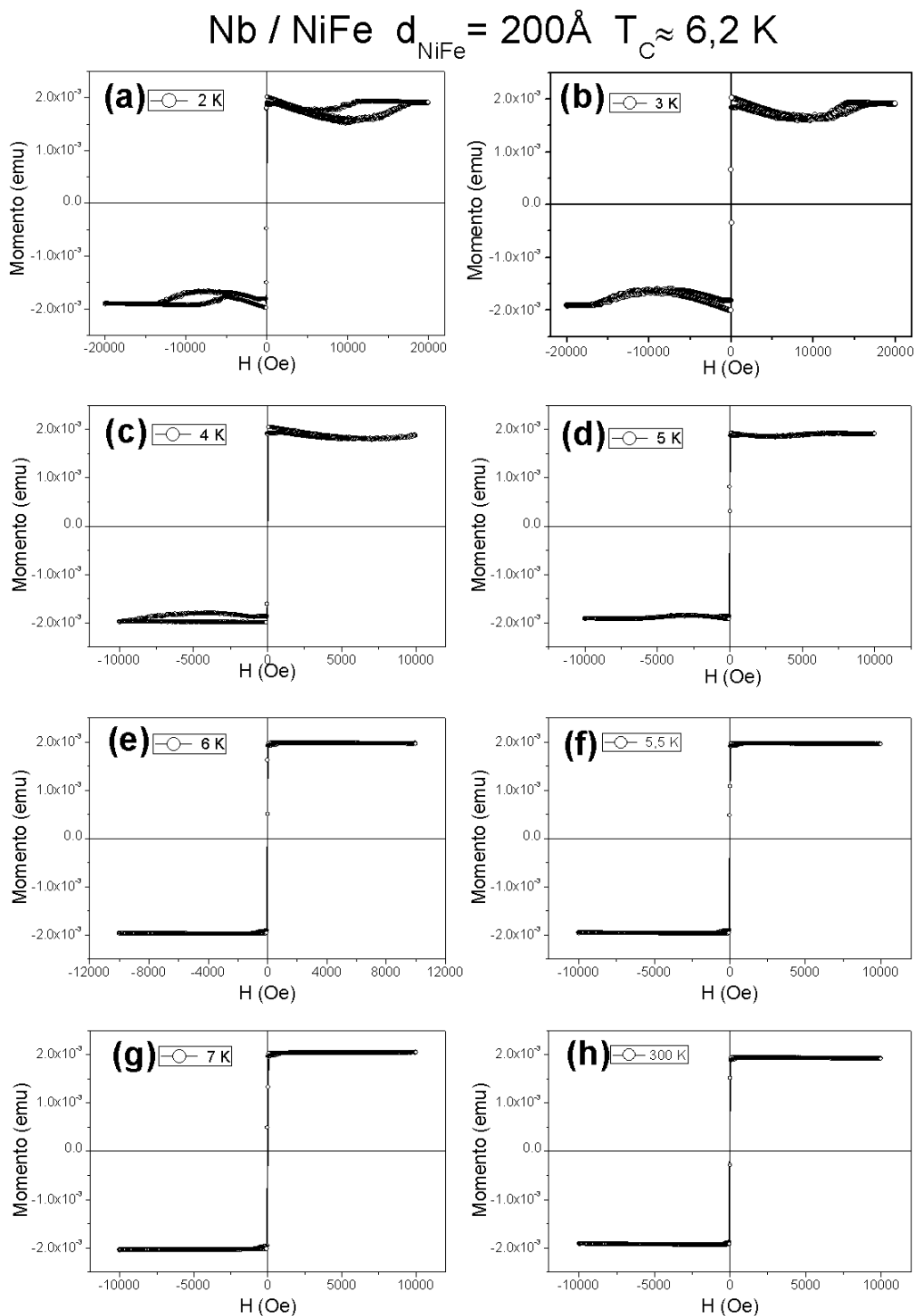


Figura 5.20: Curvas de magnetização da amostra $\text{Si}/[\text{Nb}(500\text{\AA})/\text{NiFe}(d)]_5/\text{Nb}(500\text{\AA})/\text{Ag}(50\text{\AA})$, onde $d = 200\text{ \AA}$.

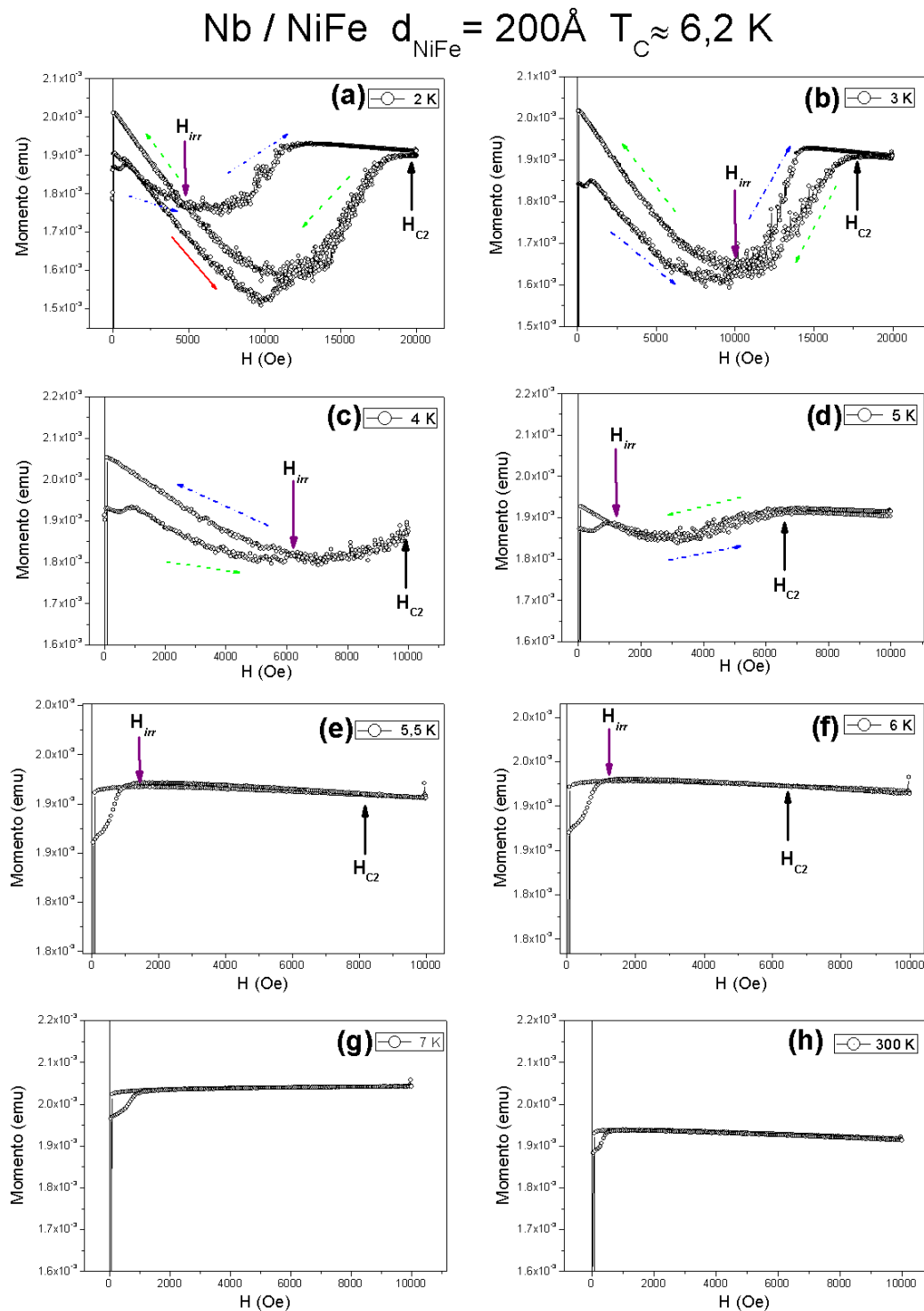


Figura 5.21: Detalhe das curvas de magnetização da amostra $Si/[Nb(500\text{\AA})/NiFe(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, onde $d = 200 \text{ \AA}$, onde são indicados H_{irr} e H_{C2} .

Neste caso, a amostra de Nb/NiFe com $d = 100\text{\AA}$ apresenta um comportamento similar aos manifestados nos sistemas anteriores de Nb/Co (figura 5.19), onde o sistema contém vórtices magnéticos em estado sólido e líquido. Por outro lado, de acordo com os detalhes da amostra de Nb/NiFe com $d = 200\text{\AA}$ (figura 5.22), o comportamento da resposta ferromagnética parece ser modificado entre os valores de campo magnético próximos à magnetização remanente e a magnetização de saturação, onde aparentemente as linhas da curva de histerese se cruzam mais de uma vez para temperaturas mais baixas.

Este efeito pode ser devido às possíveis transições do ordenamento magnético causadas pela penetração dos pares de Cooper, presentes nas camadas de material supercondutor, próximo à interface SC/FM, já que as variações no percurso da curva de histerese não são próximas da magnetização remanente. No entanto, o efeito das variações (saltos) não é evidente nestas amostras. Além disso, o percurso da curva de magnetização mostra uma forma côncava diferente à resposta das outras amostras, esta concavidade é maior em temperaturas muito baixas, e vai diminuindo quando a temperatura aumenta até valores próximos de T_C , para valores maiores da T_C a concavidade desaparece mostrando somente a resposta ferromagnética.

Comparando as duas amostras de *NiFe*, observa-se que a concavidade também pode depender da espessura das camadas FM, o que nos faz pensar que a supercondutividade presente no sistema modifica a resposta ferromagnética em distintas formas, sejam variações no percurso ou mudanças na forma da curva de histerese. Uma explicação deste efeito pode ser a interação das camadas FM presas (ou incrustadas) entre as camadas SC, de onde os processos de magnetização e demagnetização dos momentos magnéticos nas camadas FM estão fixos pelo efeito de proximidade com as camadas SC, o que faz com que os momentos próximos à interface levem mais tempo em mudar sua orientação.

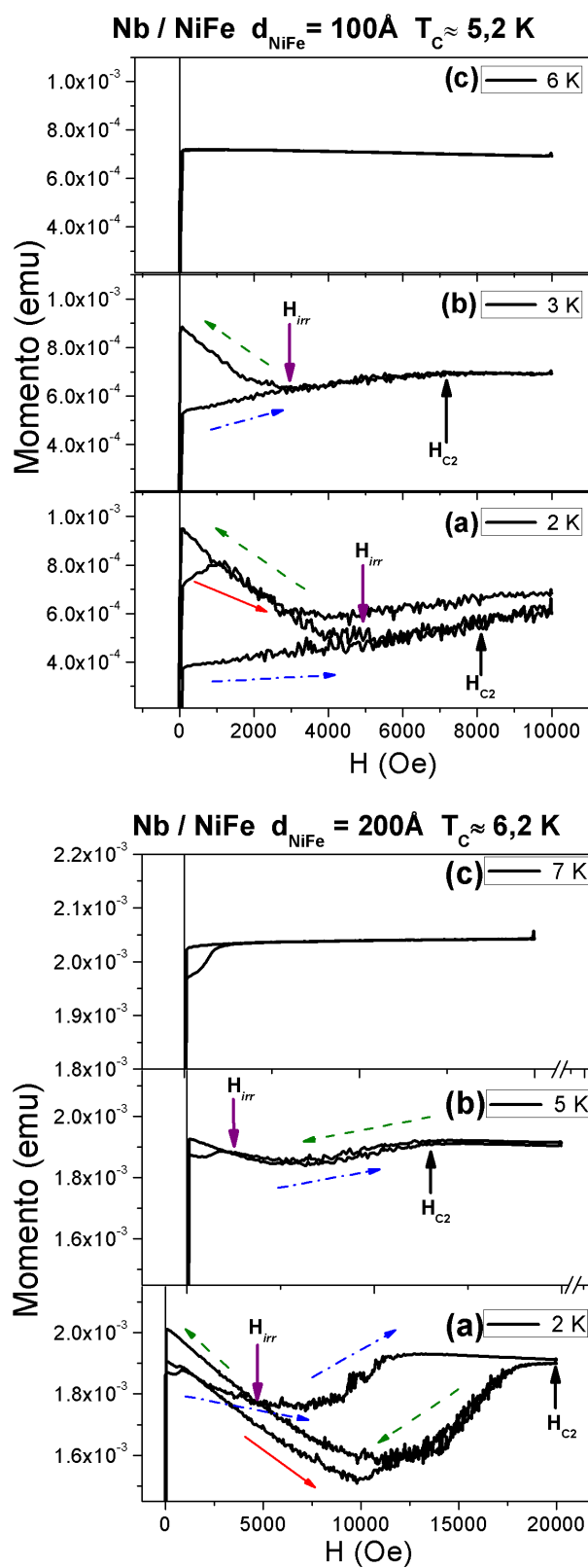


Figura 5.22: Comparação de três temperaturas das amostras Nb/NiFe com espessuras $d = 100 \text{ \AA}$ e $d = 200 \text{ \AA}$, onde são indicados H_{irr} e H_{C2} .

Também é possível observar que a mudança da resposta supercondutora depende do material FM usado, neste caso é utilizado o permalloy (NiFe) como material ferromagnético no sistema híbrido (figuras 5.23 **(a)** e **(b)**). A histerese supercondutora da amostra de espessura $d = 100 \text{ \AA}$ é similar à resposta do sistema Nb/Co, onde se observa também a mesma deformação na histerese da amostra com $d = 100 \text{ \AA}$ (figura 5.23**(a)**). Entretanto a magnetização remanente é diferente, mostrando um salto na mudança de direção do campo magnético. A resposta supercondutora pura, já subtraída a contribuição ferromagnética, é menor que no sistema Nb/Co, considerando a amostra com a mesma espessura da camada FM (figura 5.17**(b)**). Enquanto que a resposta do sistema Nb/Co é reduzida quase à metade do valor do campo ($\pm 0,5 \text{ T}$), a resposta supercondutora do sistema Nb/NiFe é quase a quarta parte da resposta do sistema ($\pm 0,25 \text{ T}$).

A resposta observada no sistema Nb/NiFe de espessura $d = 200 \text{ \AA}$ é completamente diferente da observada no sistema Nb/Co (figura 5.23**(b)**). A resposta supercondutora é alterada de tal forma que a curva de histerese mostra um cruzamento das trajetórias positivas com as negativas próximos aos valores de campo magnético $\pm 1 \text{ T}$. Estes cruzamentos estão indicados pelas setas na figura 5.22.

Neste caso a mudança da resposta supercondutora poderia ser devida a uma transição de fase dupla. A anomalia localizada para os valores menores do campo magnético aplicado, poderia indicar que a transição no ordenamento magnético é atribuída a uma estrutura diferente nas multicamadas (impurezas) da amostra. Portanto é preciso repetir o processo de preparação e caracterização para esta amostra.

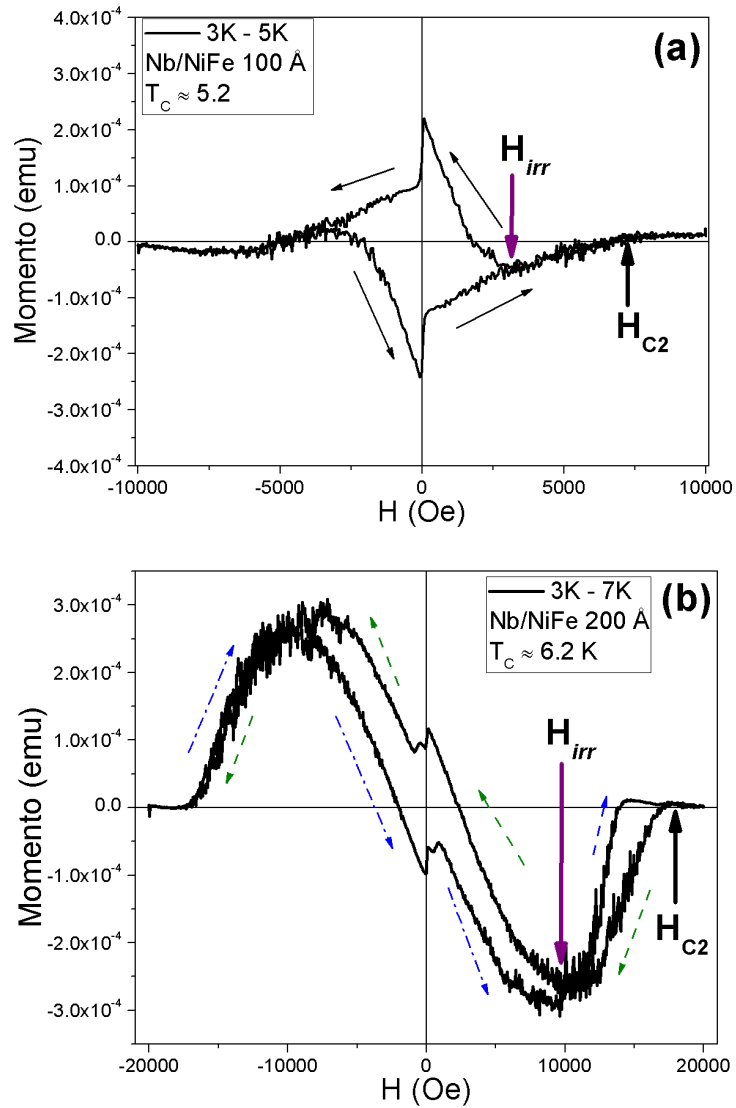


Figura 5.23: Subtração de funções a temperaturas diferentes do sistema $Si/[Nb(500\text{\AA})/NiFe(d)]_5/Nb(500\text{\AA})/Ag(50\text{\AA})$, para valores de: (a) $d = 100$ Å onde $T_1 = 3$ K e $T_2 = 5$ K, (b) e $d = 200$ Å onde $T_1 = 3$ K e $T_2 = 5.5$ K. As setas tracejadas (verdes) mostram a trajetória positiva, e as setas tracejadas-pontilhadas (azuis) indicam a trajetória negativa da curva de histerese na amostra de $d = 200$ Å, onde (a) 2 K, (b) 4 K e (c) 7 K, também são indicados H_{irr} e H_{C2} .

Capítulo 6

Conclusões

Os sistemas híbridos de multicamadas SC/FM (Nb/Co e Nb/NiFe) foram preparados por meio do sistema *Magnetron Sputtering* para estudar a interação da supercondutividade com o ferromagnetismo. As microestruturas foram estudadas por difração de raios-X (DRX) com Luz Síncrotron no LNLS. As propriedades de transporte e magnéticas foram investigadas de forma sistemática no CBPF.

Os resultados de DRX mostram que todas as amostras têm camadas com valores de espessura esperados e apresentam níveis de rugosidade consideráveis, que podem ser causadas pela interdifusão entre camadas. Este efeito pode ser uma vantagem na criação de sistemas de nanopartículas ordenadamente incrustadas no supercondutor. Porém, por alguma razão, a rugosidade na interface entre as camadas SC e FM são diferentes dependendo de espessura da camada FM. A amostra com camadas mais finas de Co tem maior rugosidade ($\approx 11 \text{ \AA}$ para 50 \AA da camada de Co e aproximadamente 8 \AA para as amostras de 100 \AA e 200 \AA) na camada supercondutora. Este poderia ser o motivo da anomalia da T_C nas amostras de Nb/Co, como é detalhado abaixo. A rugosidade nas camadas magnéticas das amostras Nb/Co é muito semelhante.

A interação da supercondutividade com o magnetismo gerado por materiais ferromagnéticos na presença de um campo magnético externo apresenta como resultado a coexistência entre estes dois fenômenos. Isso é observado nas curvas de histerese dos sistemas híbrido SC/FM, onde a mudança da ordem magnética, tanto no material supercondutor quanto no ferromagnético, deve-se a efeitos de proximidade entre as camadas do sistema. Este efeito depende da espessura das camadas do material ferromagnético, o qual é evidente na forma das curvas de histerese obtidas neste trabalho, e na mudança da resposta supercondutora em cada amostra, onde tanto a forma da curva de resposta quanto a intensidade da supercondutividade é observada na sub-

tração da contribuição ferromagnética.

Além disso, se observa que as perturbações na ordem magnética são maiores para temperaturas mais baixas ($2K$). com o aumento da temperatura, a contribuição supercondutora é reduzida e acima de T_C somente permanece a resposta ferromagnética.

Também observamos que o valor de T_C das amostras de Nb/Co aumentam com o incremento da espessura das camadas FM. Como as camadas de Co das nossas amostras são muito mais grossas do que nas amostras na literatura, e a diferença da T_C é também muito maior, não podemos concluir que o aumento de T_C com o aumento da espessura da camada de Co é o mesmo que a conhecida variação periódica de T_C .

Como os resultados de DRX mostram que a rugosidade da amostra de Co com 50 Å é alta, esta pode ser a razão para o menor valor de T_C para esta amostra. Isso é fácil de entender porque a rugosidade tem um forte efeito nas propriedades supercondutoras: primeiro, quando a rugosidade é maior, o efeito de proximidade é mais forte devido à maior área de interface; segundo, o campo de dispersão gerado pelas camadas magnéticas está apontando mais para fora do plano nas amostra com maior rugosidade; e terceiro, a espessura das camadas supercondutoras é comparável ao comprimento de coerência dos pares de Cooper no Nb, a rugosidade também dará um efeito grande diretamente nas camadas de Nb. Para descrever este fenômeno detalhadamente precisamos de mais estudos em trabalhos futuros.

Cada mudança presente nas curvas de histerese depende da contribuição que altera a ordem magnética no sistema. Quando a contribuição supercondutora modifica a ordem magnética das camadas ferromagnéticas, as curvas de magnetização apresentam uma depressão côncava que aumenta em baixas temperaturas. Além disso, as formas das saturações nas curvas de histerese mostram a presença de vórtices magnéticos, os quais dependendo da temperatura e da intensidade do campo magnético, podem estar na fase sólida de vórtices (Vortex Solid) ou na fase líquida de vórtices (Vortex Liquid). Por outro lado, a contribuição ferromagnética faz com que a curva de magnetização supercondutora apresente variações no seu percurso, ocasionada pela interação dos pares de Cooper próximos à interface SC/FM. Estes efeitos são simultâneos, mostrando assim um processo de magnetização não contínuo.

Os trabalhos anteriores no CBPF mostram que as nanopartículas de Co em filmes de Pb podem induzir vórtices espontâneos abaixo da T_C , o qual tem uma fase de transição de *vortex glass* a *vortex liquid* devido à distribuição aleatória e a orientação das partículas de Co. A pergunta é: Que tipo de fase espontânea terá com partículas magneticamente ordenadas? Com base nos resultados deste trabalho, podemos fazer um tratamento térmico nas multicamadas SC/FM e as camadas magnéticas podem formar nanopartículas ordenadas na direção perpendicular à superfície, mas distribuídas aleatoriamente em cada camada. Esperamos um comportamento muito diferente dos vórtices espontâneos com um campo magnético externo perpendicular e paralelo à superfície. Este será o seguinte passo em nosso trabalho.

Bibliografia

- [1] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. Theory of superconductivity. *Phys. Rev.*, 108:1175–1204, Dec 1957.
- [2] A. I. Buzdin. Proximity effects in superconductor-ferromagnet heterostructures. *Rev. Mod. Phys.*, 77(3):935, 2005.
- [3] Konstantin Efetov, Ilgiz Garifullin, Anatoly Volkov, and Kurt Westerholt. Proximity effects in ferromagnet/superconductor heterostructures. In Hartmut Zabel and Samuel Bader, editors, *Magnetic Heterostructures*, volume 227 of *Springer Tracts in Modern Physics*, pages 251–290. Springer Berlin / Heidelberg, 2008.
- [4] Y. T. Xing, H. Micklitz, T. G. Rappoport, M. V. Milošević, I. G. Solórzano-Naranjo, and E. Baggio-Saitovitch. Spontaneous vortex phases in superconductor/ferromagnet nanocomposites. *Phys. Rev. B*, 78(22):224524, 2008.
- [5] Y. T. Xing, H. Micklitz, W. T. Herrera, T. G. Rappoport, and E. Baggio-Saitovitch. Superconducting transition in pb/co nanocomposites: effect of co volume fraction and external magnetic field. *The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems*, 76:353–357, 2010.
- [6] E. A. Demler, G. B. Arnold, and M. R. Beasley. Superconducting proximity effects in magnetic metals. *Phys. Rev. B*, 55(22):15174–15182, Jun 1997.
- [7] Tao Zou, Hong-Ye Wu, Zhao-Hua Cheng, and Young Sun. Magnetization modification by superconductivity in *nb/ni80fe20/nb* trilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 322(1):169 – 172, 2010.
- [8] Zhaorong Yang, Martin Lange, Alexander Volodin, Ritta Szymczak, and Victor V. Moshchalkov. Domain-wall superconductivity in superconductor-ferromagnet hybrids. *Nat. Mater.*, 3(11):793–798, Nov 2004.

- [9] A. Palau, H. Parvaneh, N. A. Stelmashenko, H. Wang, J. L. Macmanus-Driscoll, and M. G. Blamire. Hysteretic vortex pinning in superconductor-ferromagnet nanocomposites. *Phys. Rev. Lett.*, 98(11):117003, 2007.
- [10] C. A. R. Sá de Melo. Magnetic exchange coupling in ferromagnet/superconductor/ferromagnet multilayers. *Phys. Rev. Lett.*, 79(10):1933–1936, Sep 1997.
- [11] L. R. Tagirov. Low-field superconducting spin switch based on a superconductor /ferromagnet multilayer. *Phys. Rev. Lett.*, 83(10):2058–2061, Sep 1999.
- [12] M. Lange, M. J. Van Bael, A. V. Silhanek, and V. V. Moshchalkov. Vortex-antivortex dynamics and field-polarity-dependent flux creep in hybrid superconductor/ferromagnet nanostructures. *Phys. Rev. B*, 72(5):052507, 2005.
- [13] M. J. Van Bael, K. Temst, V. V. Moshchalkov, and Y. Bruynseraede. Magnetic properties of submicron co islands and their use as artificial pinning centers. *Phys. Rev. B*, 59(22):14674–14679, Jun 1999.
- [14] L. Kramer. Stability limits of the meissner state and the mechanism of spontaneous vortex nucleation in superconductors. *Phys. Rev.*, 170(2):475–480, 1968.
- [15] Neil W. Ashcroft and N. David Mermin. *Solid State Physics*. Harcourt College Publishers, 1976.
- [16] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. Microscopic theory of superconductivity. *Phys. Rev.*, 106:162–164, Apr 1957.
- [17] I. A. Garifullin. Proximity effects in ferromagnet/superconductor heterostructures. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 240(1-3):571 – 576, 2002. 4th International Symposium on Metallic Multilayers.
- [18] Th. Mühge, K. Theis-Bröhl, K. Westerholt, H. Zabel, N. N. Garif’yanov, Yu. V. Goryunov, I. A. Garifullin, and G. G. Khaliullin. Influence of magnetism on superconductivity in epitaxial fe/nb bilayer systems. *Phys. Rev. B*, 57(9):5071–5074, 1998.
- [19] Zoran Radović, Marko Ledvij, Ljiljana Dobrosavljević-Grujić, A. I. Buzdin, and John R. Clem. Transition temperatures of superconductor-ferromagnet superlattices. *Phys. Rev. B*, 44(2):759–764, Jul 1991.

- [20] F. Y. Ogrin, S. L. Lee, A. D. Hillier, A. Mitchell, and T.-H. Shen. Interplay between magnetism and superconductivity in nb/co multilayers. *Phys. Rev. B*, 62(9):6021–6026, Sep 2000.
- [21] C. Poole, H. A. Farach, R. J. Creswick, and R. Prozorov. *Superconductivity*. ELSEVIER, 2007.
- [22] S. Kobayashi, T. Murai, and F. Itoh. Anomalous vortex properties of superconductor(nb)/ferromagnet(co) multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 240(1-3):589 – 591, 2002. 4th International Symposium on Metallic Multilayers.
- [23] P. W. Anderson and H. Suhl. Spin alignment in the superconducting state. *Phys. Rev.*, 116(4):898–900, Nov 1959.
- [24] F. S. Bergeret, K. B. Efetov, and A. I. Larkin. Nonhomogeneous magnetic order in superconductor-ferromagnet multilayers. *Phys. Rev. B*, 62:11872–11878, Nov 2000.
- [25] E B Sonin and N A Logoboy. Cryptoferromagnetism in superconductors with a broken time-reversal symmetry. *Journal of Physics: Conference Series*, 150(5):052245, 2009.
- [26] D. Samal, Chanchal Sow, and P. S. Anil Kumar. Observation of reduced activation energy and the possible existence of decoupled pancake vortices in superconductor/ferromagnet bilayers. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 22(29):295701, 2010.
- [27] A. Mello. *Instrumentação para Produção e Caracterização de Filmes Finos Nanoestruturados*. PhD thesis, CBPF - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro Br, 2002.
- [28] B. D. Cullity. *Elements of X-ray Diffraction*. Addison-Wesley, 1978.
- [29] A. van der Lee. Grazing incidence specular reflectivity: theory, experiment, and applications. *Solid State Sciences*, 2(2):257 – 278, 2000.
- [30] 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.
- [31] 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.

- [32] Simon Foner. Versatile and sensitive vibrating-sample magnetometer. *Review of Scientific Instruments*, 30(7):548–557, 1959.
- [33] Quantum Desing Inc. Physical property measurement system: Vibrating sample magnetometer (vsm) option user’s manual, 2004.
- [34] G. S. Ohm. *Die Galvanische Kette*. T. H. Riemann, Berlin GE, 1827.
- [35] Richard M. Roberts Howard H. Gerrish, Dugger William E. Jr. *Electricity And Electronics*. Goodheart-Willcox, 2008.
- [36] John H. Scofield. ac method for measuring low-frequency resistance fluctuation spectra. *Review of Scientific Instruments*, 58(6):985–993, 1987.
- [37] D. W. F. James and R. G. Jones. On the four-probe method of resistivity measurement. *Journal of Scientific Instruments*, 42(4):283, 1965.
- [38] Kumaresavanji Malaivelusamy. *Estudo do sistema de manganita bi-camada $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_{2-y}Ru_yO_7$ ($x = 0,34; 0,38$ e $y = 0,0; 0,04; 0,08; 0,15$) sob pressão $\bar{A}Lo$ e baixas temperaturas*. PhD thesis, CBPF - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro Br, 2010.
- [39] A. B. Filho. *Propriedades Estruturais, Magnéticas e de Transporte das Multicamadas Co/Cu e Pt/X ($X = Cu, Zr$ e WTi) Crescidas por Magnetron Sputtering*. PhD thesis, CBPF - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro Br, 2002.
- [40] D. K. Finnemore, T. F. Stromberg, and C. A. Swenson. Superconducting properties of high-purity niobium. *Phys. Rev.*, 149(1):231–243, Sep 1966.
- [41] W. A. Fietz and W. W. Webb. Hysteresis in superconducting alloys—temperature and field dependence of dislocation pinning in niobium alloys. *Phys. Rev.*, 178(2):657–667, Feb 1969.
- [42] A. V. Ramos, J.-B. Moussy, M.-J. Guittet, M. Gautier-Soyer, C. Gatel, P. Bayle-Guillemaud, B. Warot-Fonrose, and E. Snoeck. Influence of a metallic or oxide top layer in epitaxial magnetic bilayers containing $coFe_2O_4(111)$ tunnel barriers. *Phys. Rev. B*, 75(22):224421, Jun 2007.