

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
INSTITUTO DE FÍSICA “GLEB WATAGHIN”

Propriedades Supercondutoras de Sistemas Multicamadas de Ni/Nb

Ezequiel Costa Siqueira

Dissertação de Mestrado apresentada ao
Instituto de Física “Gleb Wataghin”,
da Universidade Estadual de Campinas,
como requisito parcial para a obtenção
do título de Mestre em Física.

Banca Examinadora:

Dr. Oscar Ferreira de Lima, IFGW/UNICAMP (Orientador)

Dr. Guillermo Gerardo Cabrera Oyarzún, IFGW/UNICAMP

Dr. Fernando Manuel Araújo Moreira, Depto. de Física, UFSCar

Dr. Pascoal José Giglio Pagliuso, IFGW/UNICAMP (suplente)

Dr. Edson Sardella, Depto. de Física, Unesp (suplente)

Campinas 22 de março de 2006

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP

Si75p Siqueira, Ezequiel Costa
Propriedades supercondutoras de sistemas multicamadas
de Ni/Nb / Ezequiel Costa Siqueira. -- Campinas, SP : [s.n.],
2006.

Orientador: Oscar Ferreira de Lima.
Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual de
Campinas, Instituto de Física "Gleb Wataghin".

1. Transições dimensionais. 2. Linha de desacoplamento.
3. Vórtices. I. Lima, Oscar Ferreira de. II. Universidade
Estadual de Campinas. Instituto de Física "Gleb Wataghin".
III. Título.

(vsv/ifgw)

- **Título em inglês:** Superconducting properties of Ni/Nb multilayer systems
- **Palavras-chave em inglês (Keywords):**
 - 1. Dimensional transition
 - 2. Decoupling line
 - 3. Vortex
- **Área de concentração:** Supercondutividade
- **Titulação:** Mestre em física
- **Banca examinadora:**
 - Prof. Oscar Ferreira de Lima
 - Prof. Guillermo Gerardo Cabrera Oyarzún
 - Prof. Fernando Manuel Araújo Moreira
- **Data da defesa:** 21.03.2006



Secretaria de Pós-Graduação - Tel: (19) 3788-5305 FAX: (19) 3788-4142

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE MESTRADO DE EZEQUIEL COSTA SIQUEIRA – RA 029467, APRESENTADA E APROVADA AO INSTITUTO DE FÍSICA “GLEB WATAGHIN” DA UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS, EM 21/03/2006.

COMISSÃO JULGADORA:

Prof. Dr. Oscar Ferreira de Lima (Orientador do Candidato)
DFMC/IFGW/UNICAMP

Prof. Dr. Guillermo Gerardo Cabrera Oyarzún – DFMC/IFGW/UNICAMP

Prof. Dr. Fernando Manuel Araújo Moreira – DEPTO. FÍSICA/UFSCAR

Agradecimentos

Agradeço ao professor Oscar Ferreira de Lima por ter sido meu orientador neste trabalho, aos colegas de laboratório, Tarciso, Elvis, Wallace, Gerivaldo, Carlos Mayorga, Tatiana, Natália, Maurício, Juan e Leandro, sobretudo ao Tarciso pela ajuda nos procedimentos experimentais realizados.

À minha noiva Márcia de Fátima pela compreensão e paciência.

Aos funcionários do laboratório, Walter, Cleusa e Célia que me ajudaram na preparação dos suportes das amostras e na preparação das mesmas para realizar as medidas.

À professora Íris Torriani pelas medidas de raios X em baixo ângulo e ao professor Pascoal Pagliuso pelo auxílio na realização das medidas no SQUID.

Aos funcionários da Coordenadoria de Pós-Graduação do IFGW, Maria Ignês, Cássia e Armando.

À todas as pessoas que me ajudaram direta ou indiretamente, e à todas as pessoas que tornaram-se minhas amigas aqui no Instituto.

À CAPES pela concessão da bolsa de Mestrado.

Resumo

O interesse em sistemas de multicamadas supercondutoras/ferromagnéticas deve-se a algumas questões importantes relacionadas com a supressão da temperatura crítica, à coexistência da supercondutividade e ferromagnetismo e às transições dimensionais da matéria de vórtices. Neste trabalho foram estudados filmes multicamadas preparados por *magnetron sputtering*, com fórmula geral $\text{Ni}(x)[\text{Nb}(y)/\text{Ni}(x)]_n$, onde x e y são espessuras fixas (4 Å até 20 Å e 87 Å até 250 Å) e n é o número de bicamadas de Ni/Nb. Os filmes foram caracterizados por difração de raios X em baixo e alto ângulo e por medidas de momento magnético como função da temperatura (T) e campo (H), para orientações perpendicular e paralela às camadas. Os resultados das medidas de raios X em baixo ângulo indicaram uma boa estrutura de multicamadas tendo a espessura das bicamadas ficado dentro de 5% dos valores nominais. As medidas em alto ângulo revelaram a texturização das camadas de Ni e Nb nas direções (111) e (110), respectivamente. Este estudo foi concentrado nas transições dimensionais do acoplamento supercondutor e suas implicações sobre a matéria de vórtices. Medidas de magnetização feitas na amostra $\text{Ni}(20\text{Å})[\text{Nb}(250\text{Å})/\text{Ni}(20\text{Å})]_9$ indicaram uma transição 3D-2D do sistema de vórtices, como revelado pelo comportamento do campo crítico $H_{c2||}(T)$ paralelo às camadas. Consistentemente, foi identificada uma possível linha de desacoplamento dos vórtices associada com a transição das linhas de vórtices de Abrikosov em vórtices panquecas, para a orientação de H perpendicular às camadas. Um linha de irreversibilidade foi determinada e sugere diferentes regimes da matéria de vórtices, onde a função exercida pelas camadas ferromagnéticas de Ni pode ser relevante. Todas as amostras estudadas mostraram instabilidades no momento magnético medido, devido à forte interação entre as contribuições supercondutora, das camadas de Nb, e ferromagnética, das camadas de Ni. As amostras com espessuras de Ni menores mostraram um comportamento paramagnético evidenciando os efeitos de tamanho finito sobre o magnetismo das camadas de Ni. A temperatura crítica supercondutora nestas amostras ($4\text{ K} < T_c < 6\text{ K}$) foi reduzida em relação ao valor apresentado por uma amostra volumétrica de Nb ($T_c = 9,2\text{ K}$). Em conclusão, todos os efeitos observados neste trabalho mostram uma relação muito próxima com os efeitos de tamanho finito das camadas de Ni e Nb, e com a competição entre supercondutividade e ferromagnetismo.

Abstract

The interest in multilayered superconductor/ferromagnetic structures originates from some important questions related to the critical temperature suppression, the coexistence of superconductivity and magnetism, and dimensional transitions of the vortex matter. In this work we have studied multilayered films prepared by magnetron sputtering, with general formula $\text{Ni}(x)[\text{Nb}(y)/\text{Ni}(x)]_n$, where x and y are fixed thicknesses (4 Å to 20 Å and 87 Å to 250 Å), and n is the number of bi-layers of Ni/Nb. The films were characterized by high and low angle X-ray diffraction and by measurements of the magnetic moment as a function of temperature (T) and magnetic field (H), for perpendicular and parallel orientations with respect to the layers. The results of low angle diffraction indicate a good multilayer structure having bi-layer thicknesses within 5% of the nominal values. The high angle results indicate that Ni and Nb layers are textured in (111) and (110) directions. In this study we have concentrated on the dimensional transitions of the superconducting phase and their effects on the vortex matter. Magnetization measurements made in the $\text{Ni}(20\text{Å})[\text{Nb}(250\text{Å})/\text{Ni}(20\text{Å})]_9$ sample indicated a 3D-2D crossover of the vortex system, as revealed by the parallel upper critical field behavior. Consistently, it was identified a possible decoupling line associated with transition of Abrikosov vortex lines into vortex pancakes, for H perpendicular to the layers. An irreversibility line was determined and it suggests different regimes of the vortex matter, where the role played by the Ni ferromagnetic layers might be relevant. All the samples studied show magnetic moment instabilities, due to the strong interplay between the superconducting Nb layers and the magnetic Ni layers. The samples with more thinner Ni layers showed a paramagnetic behavior in the normal state, revealing a finite size effect on the magnetic properties of the Ni layers. The superconducting critical temperature in those samples ($4\text{ K} < T_c < 6\text{ K}$) was reduced in relation to its bulk value ($T_c = 9,2\text{ K}$). In conclusion, all the effects observed in this work have shown a close relation with finite size effects of the Ni and Nb layers, and with the interplay between superconductivity and magnetism.

Sumário

Agradecimentos	v
Resumo	vii
Abstract	ix
1 Introdução	1
I Revisão Teórica e Procedimento Experimental	5
2 Supercondutividade	7
2.1 O Estado Supercondutor	7
2.2 A teoria de Ginzburg-Landau (GL) para o estado supercondutor	8
2.2.1 Supercondutividade no contexto das Transições de Fase	8
2.2.2 Equações de GL	10
2.2.3 Parâmetros característicos do estado supercondutor	11
2.2.4 Supercondutividade do tipo I e tipo II	13
2.2.5 O Estado Misto	15
2.3 Supercondutividade em sistemas lameliformes	18
2.3.1 Modelos teóricos em Transições Dimensionais	19
2.3.2 Resultados Experimentais em transições dimensionais	24
2.3.3 O Estado Misto em Sistemas Lameliformes	25
3 Sistemas Supercondutores/Ferromagnéticos (S/F)	29
3.1 Estudos sobre a Temperatura Crítica de sistemas (S/F)	30
3.2 Estudos sobre o Campo Crítico Superior de sistemas (S/F)	33

4	Procedimento Experimental	39
4.1	Medidas de Magnetização	39
4.2	Medidas de Raios X	41
4.2.1	Análise dos dados em alto ângulo	43
4.2.2	Análise dos dados em baixo ângulo	44
II	Resultados Obtidos	47
5	Resultados e Discussão	49
5.1	Amostras e Caracterização Estrutural	49
5.1.1	Caracterização por raios X em baixo ângulo	49
5.1.2	Caracterização por raios X em alto ângulo	54
5.2	Medidas de Magnetização	55
5.2.1	Análise dos dados de Magnetização	55
5.2.2	Amostra NiNb-A	56
5.2.3	Amostra NiNb-B	71
5.2.4	Amostra NiNb-C	80
5.2.5	Amostra NiNb-D	87
6	Conclusão	97
	Referências Bibliográficas	101

Introdução

Supercondutividade e ferromagnetismo são fenômenos considerados em geral como antagônicos e sua coexistência em materiais uniformes requer condições especiais de preparação, difíceis de serem realizadas. Este antagonismo se manifesta por exemplo na resposta destes fenômenos a um campo magnético. Um supercondutor repele o campo magnético (Efeito Meissner) apesar de um ferromagneto concentrar as linhas de força dentro de seu volume (Efeito de Indução Magnética). Este antagonismo também pode ser previsto da teoria microscópica: a atração entre os elétrons cria pares de Cooper, em geral em um estado singlete, apesar de que a interação de troca que produz o ferromagnetismo tende a alinhar os spins dos elétrons no mesmo sentido. Por esta razão, quando a energia Zeeman dos elétrons em um par, na presença de um campo de troca, excede a energia de acoplamento dos pares de Cooper dada pela largura do gap de energia, o estado supercondutor é destruído.

Pelas razões citadas, a coexistência de parâmetros de ordem ferromagnético e supercondutor é muito difícil de ser obtida em um mesmo material. Entretanto, a existência de ambos os parâmetros de ordem, separadamente, é facilmente obtida em sistemas multicamadas S/F preparados artificialmente, consistindo de camadas supercondutoras (S) e ferromagnéticas (F) alternadas. Devido ao efeito de proximidade, um parâmetro de ordem supercondutor pode ser induzido na camada F . Por outro lado, duas camadas F vizinhas podem interagir uma com a outra via camada S [1]. Tais sistemas exibem uma física muito rica a qual pode ser controlada através da variação das espessuras das camadas F e S ou submetendo a estrutura S/F a um campo magnético externo.

As tecnologias modernas de produção de estruturas lameliformes - tal como a técnica MBE (*molecular-beam epitaxy*), *magnetron sputtering*, etc. - permitem obter camadas de materiais com espessuras da ordem de poucos angstroms, adequadas ao estudo das propriedades de tais sistemas heterogêneos, como função de suas espessuras. Numerosos experimentos em estruturas S/F (bicamadas, tricamadas ou multicamadas)

revelaram uma dependência não trivial da temperatura crítica supercondutora, T_c , com a espessura da camada ferromagnética [2, 3, 4, 5, 6, 7]. É também de interesse especial o estudo de sistemas multicamadas S/F , nos quais vários tipos de ordem magnética podem surgir nas camadas F devido à sua interação direta com as camadas S . Desta forma, o interesse teórico geral no problema da influência mútua da supercondutividade e magnetismo em estruturas S/F , e a possibilidade de obter dados experimentais muito confiáveis, tornam muito importantes os estudos destes sistemas.

Até o momento, foram estudadas as propriedades supercondutoras de sistemas multicamadas S/F de Nb/Ni, V/Fe, Nb/Fe e Nb/Gd [1, 8, 9, 10]. No caso do sistema Nb/Ni os estudos existentes têm investigado essencialmente a variação da temperatura crítica como função das espessuras das camadas de Ni e Nb, respectivamente, t_{Ni} e t_{Nb} . Para sistemas bicamadas, foi observado que T_c oscila em função da espessura da camada de Ni. Estas oscilações foram explicadas por uma teoria de efeito de proximidade aplicada a sistemas multicamadas S/F [11]. Outros estudos têm reportado um decréscimo monotônico de T_c com t_{Ni} . Entretanto todos os trabalhos concordam que T_c decresce monotonicamente com o decréscimo de t_{Nb} , e que a supercondutividade é suprimida quando $t_{\text{Nb}} < 100 \text{ \AA}$ e $t_{\text{Ni}} > 20 \text{ \AA}$. Uma tentativa de observar o acoplamento magnético via camadas de Nb foi realizada [1]. Entretanto, devido ao efeito de proximidade entre o Nb e Ni, ocorre a supressão da supercondutividade nas finas camadas de Nb impedindo o acoplamento magnético.

Medidas do campo crítico superior, H_{c2} , perpendicular e paralelo às camadas, fornece informações importantes a respeito da dimensionalidade da fase supercondutora nos sistema multicamadas. Até o momento não foi reportada qualquer transição dimensional da fase supercondutora no sistema Ni/Nb. Isto pode ser investigado, por exemplo, medindo-se o campo crítico paralelo às camadas $H_{c2||}(T)$ como função da temperatura, o qual é esperado apresentar um comportamento $H_{c2||}(T) \propto (1 - T/T_c)^{1/2}$ no caso bidimensional (2D) e um comportamento linear no caso tridimensional (3D) [12]. Em sistemas S/F , a transição dimensional (3D-2D) da supercondutividade foi reportada apenas em sistemas V/Fe, Nb/Fe e Nb/Co [8, 9, 13], desta forma requerendo mais estudos nesta área. Nos óxidos supercondutores de alta temperatura crítica $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ e $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$, um tipo diferente de transição dimensional foi observada a qual é caracterizada por uma transição dupla nas curvas de magnetização (curvas MxT) [14, 15]. Uma possível explicação foi feita considerando que a transição na temperatura mais alta estaria associada com a transição para o estado supercondutor enquanto que a segunda transição, verificada em uma temperatura mais baixa, poderia estar ligada a um desacoplamento dos vórtices, indo de um sistema 3D de vórtices de Abrikosov para uma rede de panquecas de vórtices (2D) [16]. Isto poderia ocorrer também em um sistema multicamadas S/F , quando o comprimento de coerência se tornasse menor do que

a espessura da camada supercondutora.

Neste trabalho de tese, foram realizados estudos das propriedades supercondutoras do sistema multicamadas de Ni/Nb, crescidos por *magnetron sputtering*. O objetivo foi verificar as propriedades supercondutoras das camadas de Nb no estado misto, o que ainda não foi explorado em sistemas S/F . A caracterização estrutural foi realizada por difração de raios X em baixo e alto ângulo. Medidas de magnetização em função da temperatura e campo magnético foram realizadas com o objetivo de caracterizar magneticamente as amostras. Estas medidas revelaram uma transição dimensional do acoplamento supercondutor repercutindo fortemente sobre as propriedades da matéria de vórtices. Uma transição dupla foi verificada nas medidas para o campo aplicado perpendicularmente às camadas de umas das amostras. Isto foi atribuído à um possível desacoplamento do sistema de vórtices (3D-2D), de modo semelhante ao que ocorre nos óxidos de alta temperatura crítica. Outro resultado relevante foi a ocorrência de instabilidades no momento magnético medido nas curvas de magnetização em função do campo ($M \times H$). Estas instabilidades são intrínsecas deste sistema, apresentando um caráter sistemático conforme mostram os dados obtidos.

A estrutura da tese é organizada da seguinte forma: no capítulo 2, é feita uma revisão geral da supercondutividade, explorando os principais conceitos que serão usados posteriormente, na análise dos dados obtidos. No capítulo 3, são revisados os principais resultados obtidos em sistemas S/F ; basicamente foram realizados estudos do efeito de proximidade sobre a temperatura crítica supercondutora e algumas medidas de campo crítico superior. No capítulo 4, é descrito o procedimento experimental adotado na aquisição dos dados deste trabalho. No capítulo 5, são apresentados e discutidos os resultados obtidos para as amostras estudadas. Finalmente, no capítulo 6, são apresentadas as conclusões obtidas neste trabalho.

Parte I

Revisão Teórica e Procedimento Experimental

Supercondutividade

Neste capítulo são discutidas as propriedades básicas da supercondutividade para sistemas macroscópicos tridimensionais e algumas mudanças no comportamento da dinâmica de vórtices em sistemas lameliformes.

2.1 O Estado Supercondutor

O estado supercondutor foi descoberto em 1911 por H. K. Onnes [17, 18, 19], que mediu a resistividade de uma amostra de mercúrio em baixas temperaturas. Para temperaturas inferiores a 4,15 K, foi observado que a resistividade caía abruptamente a zero. Com isso, o metal conduz a corrente elétrica sem dissipação de energia por efeito Joule. Desde que um condutor perfeito também poderia transportar corrente elétrica sem dissipação, foi considerado se um material supercondutor seria simplesmente um condutor perfeito. A resposta deste a um campo magnético aplicado é diferente dependendo do estado inicial antes de resfriá-lo a zero Kelvin. Somente em $T = 0$ K um condutor ordinário com nenhum defeito ou impureza na rede cristalina poderia conduzir uma corrente sem dissipação. As vibrações da rede devido a agitação térmica podem introduzir espalhamentos nos elétrons de condução. Se for aplicado um campo magnético antes de ser resfriada a amostra, quando este campo é desligado surgirão correntes superficiais de modo a manter o campo magnético inicial no interior da amostra, em concordância com a Lei de Faraday-Lenz. Porém, caso o condutor seja resfriado na ausência de campo, e somente em $T = 0$ K o mesmo seja aplicado, surgirão correntes superficiais que produzirão um campo que irá cancelar o campo externo, de modo que quando o campo aplicado é desligado o interior da amostra permanecerá sem campo, como na situação inicial. Este tipo de comportamento é diferente para uma amostra supercondutora em que o interior da amostra sempre apresentará campo nulo independente da ordem em que a amostra é resfriada e o campo é aplicado. Este efeito foi descoberto em 1933 por Meissner e Ochsenfeld [20] e constitui um caráter particular do estado supercondutor.

As tentativas de explicar e descrever a supercondutividade deram origem a duas teorias principais:

a teoria fenomenológica de Ginzburg-Landau (GL)[21] e a teoria microscópica BCS [22]. Existe ainda o modelo clássico proposto pelos irmãos London, que propõem uma teoria eletrodinâmica de modo a explicar o efeito Meissner. Com esta teoria é previsto que no supercondutor existe uma profundidade de penetração do campo magnético que é muito pequena.

Ginzburg e Landau propuseram um parâmetro de ordem para o estado supercondutor de modo que a transição supercondutor-normal pudesse ser tratada como sendo uma transição de fase, em analogia com os estados físicos da matéria, e.g, estados sólido, líquido e gasoso. Certamente que a supercondutividade é uma transição mais sutil, comparada com os exemplos citados, isto devido a transição ocorrer no comportamento dos elétrons de condução do material. Por outro lado, de acordo com a teoria BCS, o que ocorre abaixo da temperatura crítica é um estado altamente correlacionado dos elétrons de condução, que passam a se ligar formando os chamados pares de Cooper.

Na área experimental de supercondutividade, a pesquisa por novos materiais que apresentam temperaturas de transição mais elevadas tem se desenvolvido ao longo dos anos, culminando na descoberta dos óxidos supercondutores de alta temperatura crítica [23]. Ainda não existe explicação teórica para a causa da supercondutividade nestes materiais, e a teoria BCS falha em explicar o estado supercondutor nestes sistemas. Os estudos experimentais em geral baseiam-se na aplicação da teoria de GL, a qual descreve de maneira satisfatória muitas das características observadas. Por essa razão, embora a teoria de GL seja fenomenológica esta apresenta extrema utilidade nas pesquisas experimentais.

A seguir é dado uma breve introdução à teoria de GL, onde são definidos os principais parâmetros que descrevem o estado supercondutor.

2.2 A teoria de Ginzburg-Landau (GL) para o estado supercondutor

Conforme mencionado acima a teoria BCS falha em explicar a supercondutividade nos óxidos de alta temperatura crítica, porém apresenta uma ótima concordância com os dados experimentais para os supercondutores convencionais de baixa T_c . Em sistemas onde é necessário a consideração da variação espacial do gap de energia a teoria microscópica se torna muito complexa para ser aplicada. Desta forma, a teoria de Ginzburg-Landau oferece um meio alternativo para descrever os dados experimentais.

2.2.1 Supercondutividade no contexto das Transições de Fase

As transições de fase comumente são entendidas por mudanças nas propriedades físicas de uma dada substância com a variação das condições externas a que ela está submetida. Estas condições são determinadas pelas chamadas variáveis termodinâmicas, a exemplo da temperatura, pressão, volume, campo

magnético, etc. Dentro desta linha de raciocínio pode-se classificar o estado supercondutor como sendo um tipo de transição de fase, onde o comportamento dos elétrons de condução do metal apresentam características distintas, acima e abaixo do ponto crítico onde ocorre a transição.

No estudo das transições de fase, são consideradas as variações na energia livre em função das variações dos parâmetros termodinâmicos ($P, V, T..$). De acordo com o critério estabelecido por Ehrenfest [24], pode-se classificar as transições de fase olhando para as derivadas da energia livre que são descontínuas na transição. No caso de uma transição de primeira ordem, a primeira derivada da energia livre em relação aos parâmetros termodinâmicos apresenta uma descontinuidade. No caso de transições de segunda ordem, a descontinuidade ocorre a partir da segunda derivada da energia livre, de modo que este tipo de transição pode ser caracterizada por uma descontinuidade na curva do calor específico. Desde que as primeiras derivadas são contínuas, os parâmetros como entropia, volume, magnetização, etc, apresentam uma variação contínua quando ocorre uma transição de segunda ordem.

Um exemplo simples de transição de segunda ordem é a passagem do estado ferromagnético para o estado paramagnético. A magnetização espontânea M da amostra, a qual existe abaixo da temperatura crítica de Curie T_{cm} , desaparece acima de T_{cm} . A magnetização é contínua e muito pequena na transição, próxima à temperatura crítica. Uma maneira de descrever a termodinâmica do sistema é através da expansão da energia livre em potências da magnetização M , próximo ao ponto de transição [25],

$$F(T, M) = F(T, 0) + a(T - T_{cm})M^2 + bM^4 + c|\nabla M|^2. \quad (2.1)$$

Minimizando esta energia em relação a M , obtém-se:

$$M = 0, \quad \text{para} \quad T > T_{cm},$$

$$M \neq 0, \quad \text{para} \quad T < T_{cm}.$$

Usando esta análise como ponto de partida, é possível descrever a transição magnética. Landau considerou que qualquer transição de segunda ordem poderia ser descrita de modo semelhante: a magnetização M , sendo trocada por qualquer outra quantidade, chamada de parâmetro de ordem, a qual é nula acima do ponto de transição e não nula abaixo do mesmo. Outra propriedade importante do parâmetro de ordem é que abaixo da temperatura crítica este não é completamente determinado, podendo apresentar valores diferentes sob condições físicas idênticas. A fase ordenada escolhe um desses valores, quebrando espontaneamente a simetria do sistema.

Medidas de calor específico mostraram que o mesmo apresenta uma descontinuidade na passagem para o estado supercondutor. A entropia e outras grandezas obtidas da primeira derivada da energia livre ,

apresentam um caráter contínuo na transição tornando o estado supercondutor um dos exemplos clássicos de uma transição de segunda ordem. Isto permite descrever a supercondutividade aplicando os conceitos da teoria de transições de fase proposta por Landau. A base desta descrição é a idéia intuitiva de que um supercondutor contém elétrons supercondutores, com densidade n_s e elétrons não-supercondutores com densidade $n - n_s$, onde n é a densidade total de elétrons no metal.

Uma possibilidade seria usar a densidade n_s como o parâmetro de ordem supercondutor. Entretanto, Ginzburg e Landau escolheram uma espécie de função de onda $\psi(\mathbf{r})$ para descrever os elétrons supercondutores,

$$\psi(\mathbf{r}) = |\psi(\mathbf{r})|e^{i\varphi(\mathbf{r})}. \quad (2.2)$$

A equação 2.2 é a representação do parâmetro de ordem supercondutor, o qual apresenta as seguintes propriedades:

1. Seu módulo $|\psi^*\psi|$ pode ser interpretado como o número de elétrons supercondutores n_s no ponto $\mathbf{r}$;
2. Como em Mecânica Quântica, a fase $\varphi(\mathbf{r})$ está relacionada com a densidade de supercorrente que flui no material abaixo de T_c ;
3. No estado supercondutor $\psi \neq 0$, e no estado normal $\psi=0$.

2.2.2 Equações de GL

O método empregado para a derivação da teoria de GL é o mesmo utilizado na teoria de Landau, ou seja, é considerado o funcional da densidade de energia livre (semelhante ao funcional dado pela equação 2.1) e em seguida é aplicado um método variacional para determinar o parâmetro de ordem, $\psi(\mathbf{r})$, que descreve o condensado supercondutor. Além de ser feita uma variação em relação a ψ^* também é feita uma variação em relação ao vetor potencial magnético, desde que a intensidade de campo magnético é um dos parâmetros termodinâmicos que caracterizam o estado supercondutor. Este procedimento permite obter duas equações diferenciais acopladas (equações 2.3 e 2.4). Resolvendo estas duas equações diferenciais, obtém-se o vetor potencial magnético e o parâmetro de ordem para uma dada situação e para um conjunto de condições de contorno [12, 25].

$$\alpha\psi + \beta|\psi|^2\psi + \frac{1}{2m^*} \left(\frac{\hbar}{i}\nabla - \frac{e^*}{c}\mathbf{A} \right)^2 \psi = 0 \quad (2.3)$$

e,

$$\mathbf{J} = \frac{e^*\hbar}{2m^*i}(\psi^*\nabla\psi - \psi\nabla\psi^*) - \frac{e^{*2}}{m^*c}\psi\psi^*\mathbf{A} \quad (2.4)$$

Na equação 2.3, α e β são dois parâmetros que dependem apenas da temperatura e podem ser relacionados com parâmetros que podem ser medidos experimentalmente. $\mathbf{J}$ e $\mathbf{A}$ são a densidade de corrente e o vetor potencial magnético, respectivamente.

2.2.3 Parâmetros característicos do estado supercondutor

Algumas grandezas características do estado supercondutor podem ser obtidas diretamente das equações 2.3 e 2.4 simplesmente particularizando-as para os casos mais simples.

1. Campo crítico Termodinâmico

Para determinar o campo crítico para o caso simples em que não existem variações do parâmetro de ordem e sem campo magnético externo aplicado, então a equação 2.3 pode ser escrita na forma,

$$|\psi_0|^2 = -\frac{\alpha}{\beta}$$

com ψ_0 sendo o parâmetro de ordem com campo magnético nulo. Assim, desde que não existem soluções para $T > T_c$ (o parâmetro de ordem é nulo acima da transição), considerando que $\alpha = a(T - T_c)$ e $\beta > 0$ o parâmetro de ordem apresenta um valor finito abaixo da temperatura de transição. A diferença na densidade de energia livre entre o estado supercondutor e o estado normal é dado por:

$$f_s(\mathbf{r}, T) - f_n(\mathbf{r}, T) = \alpha|\psi_0|^2 + \frac{\beta}{2}|\psi_0|^4$$

onde foi retida a soma até o termo em quarta ordem em $|\psi|$. Agora, substituindo $|\psi_0|$ obtido da equação de GL, pode-se escrever:

$$f_s(\mathbf{r}, T) - f_n(\mathbf{r}, T) = -\frac{\alpha^2}{2\beta}.$$

Da termodinâmica do estado supercondutor sabe-se que,

$$f_n(\mathbf{r}, T) - f_s(\mathbf{r}, T) = \frac{H_c^2}{8\pi}$$

então pode-se escrever o campo crítico na forma,

$$H_c^2 = 4\pi \frac{\alpha^2}{\beta}. \quad (2.5)$$

2. Profundidade de penetração magnética

Considerando agora que é aplicado um campo magnético pequeno que não produza variações do parâmetro de ordem, pode-se considerar a segunda equação de GL (equação 2.4) na forma,

$$\mathbf{J} = \frac{c}{4\pi} \nabla \times \mathbf{H} = -\frac{|\psi_0|^2 e^{*2}}{m^* c} \mathbf{A}$$

Definindo λ como sendo,

$$\lambda = \sqrt{\frac{m^* c^2}{4\pi |\psi_0|^2 e^{*2}}} \quad (2.6)$$

obtém-se a profundidade de penetração de London, definida no modelo clássico como sendo a distância em que a densidade de fluxo aplicado decresce a aproximadamente 36% do valor na superfície do material. Substituindo novamente na equação acima, pode-se obter uma equação que permite determinar a distribuição de campo magnético:

$$\nabla \times \mathbf{H} = -\frac{1}{\lambda^2} \mathbf{A}.$$

3. Comprimento de Coerência

Considerando a primeira equação de GL 2.3 no caso unidimensional e sem campo magnético aplicado, pode-se escrever:

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2\psi}{dx^2} + \alpha\psi + \beta|\psi|^2\psi = 0$$

O comprimento de coerência é definido como sendo,

$$\xi^2(T) = \frac{\hbar^2}{2m^*|\alpha|} \quad (2.7)$$

A solução da equação acima depende apenas da razão, $x/\xi(T)$. O parâmetro ξ representa a distância sobre a qual o parâmetro de ordem $\psi(\mathbf{r})$ varia quando é introduzido algum tipo de perturbação no sistema.

4. Quantização do Fluxo - Vórtices

Através da equação 2.4 é possível perceber um dos resultados fundamentais da supercondutividade. Considerando o parâmetro de ordem na forma dada pela equação 2.2, é possível reescrever a equação 2.4 na forma dada por:

$$\mathbf{J} = \frac{e^* \hbar}{m^*} |\psi|^2 \nabla \varphi - \frac{e^{*2}}{m^* c} |\psi|^2 \mathbf{A}$$

Multiplicando a equação acima por $(m^*/e^{*2}|\psi|^2)$ e integrando em torno de um caminho fechado, tem-se que:

$$\frac{m^*c}{|\psi|^2e^{*2}} \oint_C \mathbf{J} \cdot d\mathbf{l} = \frac{\hbar c}{e^*} \oint_C \nabla \varphi \cdot d\mathbf{l} - \oint_C \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l} \quad (2.8)$$

Desde que o parâmetro de ordem deve ser unívoco então, a relação abaixo deve ser satisfeita,

$$\oint_C \nabla \varphi \cdot d\mathbf{l} = 2\pi n$$

onde, n é um número inteiro.

Assim a equação 2.8 pode ser reescrita na forma,

$$\frac{m^*c}{|\psi|^2e^{*2}} \oint_C \mathbf{J} \cdot d\mathbf{l} + \oint_C \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l} = n\Phi_0$$

onde, Φ_0 , é definido por,

$$\Phi_0 = \frac{\hbar c}{e^*} = \frac{\hbar c}{2e} = 2,07 \times 10^{-15} \text{G cm}^2 \quad (2.9)$$

e é denominado quantum de fluxo. Conforme mostram os dados experimentais [12] e a teoria microscópica BCS [22], a carga efetiva e^* é igual ao dobro da carga do elétron, $e^* = 2e$. Conforme será discutido, em supercondutores do tipo II o fluxo quantizado ocorre na forma de vórtices, os quais encerram exatamente um quantum de fluxo em seu interior.

De maneira mais geral, qualquer região normal encerrada por material supercondutor apresenta fluxo magnético dado por um múltiplo de Φ_0 . Isto pode ser verificado reescrevendo o terceiro termo da equação 2.8 usando o Teorema de Stokes e a relação entre a densidade de fluxo magnético e o vetor potencial $\mathbf{A}$, $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$. Isto faz com que a equação 2.8 fique na forma,

$$\frac{m^*c}{|\psi|^2e^{*2}} \oint_C \mathbf{J} \cdot d\mathbf{l} + \Phi = n\Phi_0 \quad (2.10)$$

com,

$$\Phi = \int_S \mathbf{B} \cdot d\mathbf{s} = \int_S \nabla \times \mathbf{A} \cdot d\mathbf{s} = \oint_C \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l}.$$

O fluxo total $n\Phi_0$ é dado pela contribuição do fluxo aplicado Φ , o qual é arbitrário e uma contribuição das supercorrentes induzidas no supercondutor. Estas ajustam-se de modo que o fluxo total seja quantizado.

2.2.4 Supercondutividade do tipo I e tipo II

Em 1957, Abrikosov [26, 27] mostrou que poderiam existir dois tipos de materiais supercondutores. A primeira classe, dos materiais chamados do tipo I, apresenta duas regiões no diagrama de fases HxT. Uma região Meissner, onde o sistema é supercondutor e exclui todo o fluxo magnético de seu interior, e

uma região normal. No caso dos materiais da segunda classe, denominados tipo II, existem três regiões no diagrama de fases destes materiais. A região Meissner, para campos abaixo de $H_{c1}(T)$, o estado misto no intervalo $H_{c1}(T) < H < H_{c2}(T)$, onde o supercondutor é parcialmente penetrado pelas linhas de fluxo, e o estado normal para $H > H_{c2}(T)$. O estado misto será discutido com maiores detalhes na seção a seguir.

Na temperatura crítica T_c , a transição de fase entre o estado normal e o estado supercondutor é sempre de segunda ordem, sob campo magnético zero. Para supercondutores do tipo I, a uma dada temperatura abaixo de T_c , a transição do estado supercondutor para o estado normal é de primeira ordem em H_c . Isso é contrário ao comportamento dos supercondutores do tipo II, os quais sempre sofrem uma transição de segunda ordem no chamado campo crítico superior H_{c2} .

No caso de uma transição de segunda ordem pode-se escrever a equação 2.3 considerando-se apenas os termos de primeira ordem em ψ :

$$\frac{1}{2m^*} \left(\frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{e^*}{c} \mathbf{A} \right)^2 \psi = -\alpha \psi \quad (2.11)$$

A contribuição das supercorrentes é dada pela equação 2.4, entretanto como esta depende apenas dos termos de segunda ordem em ψ a mesma pode ser descartada na análise. A equação 2.11 tem a forma de uma equação de Schrödinger para uma partícula de carga $2e$ em um campo magnético. Seu auto-valor mais baixo é,

$$E_0 = \frac{1}{2} \hbar \omega_c$$

onde ω_c é a frequência ciclotron, $\omega_c = e^* H / m^* c$. A equação 2.11 tem uma solução não nula para ψ e portanto, o surgimento do estado supercondutor, caso $H < H_{c2}$, com

$$\frac{e^* \hbar H_{c2}}{2m^* c} = -\alpha.$$

Usando a definição do comprimento de coerência dado pela equação 2.7, e o quantum de fluxo $\Phi_0 = hc/2e$, obtém-se:

$$H_{c2} = \frac{\Phi_0}{2\pi} \frac{1}{\xi^2(T)} \quad (2.12)$$

Combinando as equações 2.5, 2.6, 2.7 e 2.12, pode-se reescrever o campo crítico superior na forma:

$$H_{c2} = \kappa \sqrt{2} H_c \quad (2.13)$$

onde, κ é o chamado parâmetro de GL, definido por:

$$\kappa = \frac{\lambda}{\xi} \quad (2.14)$$

A equações 2.13 e 2.14 permitem distinguir dois comportamentos distintos:

- Se $\kappa < 1/\sqrt{2}$, tem-se que $H_{c2} < H_c$. Assim, reduzindo-se o campo aplicado, o estado supercondutor surge com expulsão completa do fluxo magnético. Este é o comportamento de um supercondutor tipo I.
- Se $\kappa > 1/\sqrt{2}$, então $H_{c2} > H_c$. Neste caso o estado supercondutor, também existe acima do campo H_c , no chamado *estado misto*, e tem-se um supercondutor do tipo II.

Para se obter $B = 0$ no interior do supercondutor é necessário uma quantidade considerável de energia magnética. Supercondutores do tipo II minimizam esta energia permitindo a penetração de campo através de pequenos cilindros que são os núcleos normais, dos vórtices, no estado misto do supercondutor. Como não é possível variar o parâmetro de ordem em uma extensão maior do que o comprimento de coerência, o menor diâmetro possível do núcleo do vórtice tem um raio ξ . A nucleação do vórtice custa uma energia proporcional a $\frac{H_c^2}{8\pi}\xi^2 d$, onde d é o comprimento do vórtice. O campo magnético que penetra no núcleo do vórtice estende-se em uma extensão dada pela profundidade de penetração de campo λ . Assim, o ganho em energia é proporcional a $\frac{H_c^2}{8\pi}\lambda^2 d$. Então o balanço de energia será favorável à criação do vórtice caso $\lambda \gg \xi$ ou $\kappa \gg 1$. Isto explica porque o comportamento magnético de um supercondutor é diferente para $\kappa \gg 1$ quando comparado a $\kappa < 1$.

2.2.5 O Estado Misto

Conforme dito anteriormente o estado misto é apresentado por supercondutores tipo II os quais apresentam $\kappa > 1/\sqrt{2}$, de modo que acima de um certo campo crítico inferior H_{c1} ocorre a penetração do campo magnético na forma de linhas de fluxo, chamadas de vórtices. O campo decai radialmente, a partir do núcleo do vórtice, em uma escala de comprimento dada pela profundidade de penetração magnética λ . Desde que o campo magnético apresenta o mesmo sentido em todos os vórtices, a interação entre os mesmos se torna repulsiva. No caso de amostras *limpas* em que a quantidade de impurezas é muito pequena, a interação magnética predomina e o surgimento de uma rede triangular de vórtices é estabelecida no supercondutor. Esta foi uma previsão feita por A. A. Abrikosov [26] e, muitas vezes, a rede de vórtices é denominada rede de Abrikosov. É possível demonstrar que a distância entre as linhas de fluxo, no caso de uma rede triangular, é dada por [12, 27],

$$a_0 = \sqrt{\frac{2\Phi_0}{\sqrt{3}B}} \quad (2.15)$$

onde, Φ_0 é o fluxo quântico dado por $\Phi_0 = \frac{hc}{2e} = 2,07 \times 10^{-7} \text{ G cm}^2$ e B é a densidade de campo aplicado. O campo crítico superior H_{c2} pode ser interpretado como sendo o campo em que a distância entre os vórtices,

dada pela equação 2.15, é menor do que o comprimento de coerência, de modo que não existe mais um caminho supercondutor contínuo na amostra.

Quando é aplicada uma corrente elétrica no estado misto, ocorre uma interação magnética desta com a linha de fluxo. Conseqüentemente, surge uma força de Lorentz sobre a corrente, devido ao vórtice, e vice-versa sobre as linhas de fluxo:

$$\mathbf{f}_L = \Phi_0 \mathbf{J} \times \mathbf{n}. \quad (2.16)$$

Na equação acima, $\mathbf{f}_L$ é a força de Lorentz por unidade de comprimento da linha de fluxo e $\mathbf{n}$ é um vetor unitário na direção do campo magnético do vórtice. Sob a ação da força de Lorentz os vórtices irão acelerar até que alcancem um estado estacionário, quando a força de Lorentz é equilibrada pela força viscosa $\mathbf{F}_\eta = -\eta \mathbf{v}$, com $\mathbf{v}$ sendo a velocidade do vórtice. O movimento da linha de fluxo induz um campo elétrico dado por,

$$\mathbf{E} = \mathbf{B} \times \mathbf{v} \quad (2.17)$$

o qual é paralelo à corrente externa e implica em uma dissipação de energia na forma de calor. Por esta razão, se os vórtices podem se mover livremente não é possível transportar uma corrente no estado misto sem dissipação de energia. Da equação 2.16, considerando que existam N vórtices por unidade de área, então a rede de vórtices experimenta uma força de Lorentz média por unidade de volume dada por:

$$\mathbf{F}_L = N \Phi_0 \mathbf{J} \times \mathbf{n}. \quad (2.18)$$

Assim, para ser possível transportar uma corrente elétrica através do supercondutor no estado misto, é imperativo impedir o movimento da rede de vórtices. Ou seja, é necessário encontrar mecanismos ou geometrias que aprisionem os vórtices na amostra. Considerando F_p a força média de *pinning*, i.e., a força exercida pelos centros de aprisionamento sobre os vórtices, então para que não ocorra a dissipação de energia, é preciso que a condição $F_p > F_L$ seja satisfeita. Em supercondutores convencionais, o aprisionamento de vórtices é obtido através da introdução regiões não homogêneas no material: devido a conseqüente variação local de ξ ou λ , o custo energético para o supercondutor gerar uma região normal no seu interior diminui, e o vórtice fica ancorado nesta região. Como foi discutido no final da página 15 (seção 2.2.4), a nucleação de um vórtice no material supercondutor causa um aumento na energia livre dado por:

$$\Delta G_{\text{vortice}} = \frac{H_c^2}{8\pi} \pi \xi^2 d$$

onde o núcleo do vórtice apresenta um comprimento d . Entretanto, o sistema pode diminuir a energia livre estando o núcleo do vórtice situado numa região normal da amostra em vez de ser gerado um núcleo normal

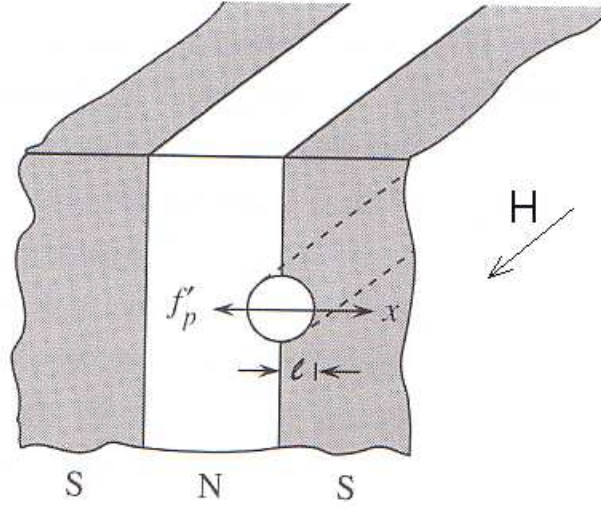


Figura 2.1: Vórtice parcialmente em uma região normal. Esta situação custa menos energia ao sistema comparado ao caso onde o vórtice estivesse inteiramente na região supercondutora [28].

num volume supercondutor. Em outras palavras, desde que o núcleo do vórtice é normal de qualquer modo, o sistema economiza energia se o vórtice fica situado em uma região da amostra já no estado normal. Com o objetivo de estimar o ganho de energia do sistema, na figura 2.1 é ilustrado um vórtice localizado em uma interface normal (N) e supercondutora (S). A diferença na energia livre, ΔG , quando o vórtice está parcialmente na região normal e quando o mesmo está totalmente situado na região supercondutora é dada pela parte do núcleo situada na região normal. Assim se o raio do núcleo está a uma distância l , como mostrado na figura 2.1, então:

$$\Delta G = \frac{1}{2} \left(\frac{H_c^2}{8\pi} \right) \pi \xi l d \quad (2.19)$$

A força de aprisionamento devido a região normal pode ser determinada por:

$$F_p = -\frac{\partial}{\partial l}(\Delta G)$$

o que resulta em,

$$F_p = -\frac{1}{16} H_c^2 \xi d \quad (2.20)$$

A força dada pela equação 2.20, está na direção x negativa indicando que o vórtice é puxado no sentido da região normal. Caso a força tivesse sido calculada para a outra fronteira S/N , ainda assim a força tenderia a levar o vórtice para a região N . Isso mostra claramente que a introdução de regiões normais, ou mesmo que apresente propriedade diferentes do volume supercondutor, tende a aprisionar os vórtices dificultando o movimento dos mesmos.

Se for considerado uma rede de Abrikosov e uma distribuição aleatória de vórtices, a força de *pinning* média será estatisticamente nula. Quando o aprisionamento dos vórtices ocorre de fato, isso é explicado considerando que exista uma deformação da rede de vórtices. Neste caso a energia total do sistema é reduzida pela deformação da rede e, com isso, para haver movimento das linha de fluxo é necessário uma contribuição externa de energia. Com o objetivo de esclarecer as conseqüência do efeito do *pinning* sobre a rede, pode-se supor que exista uma distribuição aleatória de centros de aprisionamento cuja intensidade da força de *pinning* aumente gradualmente sobre uma rede de vórtices. Então para pequenas intensidades do *pinning*, a rede irá responder elasticamente, e usando a teoria de elasticidade da rede é possível determinar o deslocamento de cada vórtice e a energia correspondente. Para intensidades mais elevadas do *pinning*, são gerados deslocamentos e outros defeitos na rede. Neste sentido, a rede de vórtices pode ser descrita usando um formalismo da teoria de elasticidade. No contexto desta teoria, a rede de vórtices pode ser descrita por três módulos elásticos: C_{11} , C_{66} e C_{44} . O módulo de compressão (C_{11}) descreve a deformação que muda apenas o tamanho do parâmetro de rede sem destruir sua forma. Este é grande comparado ao módulo de inclinação, C_{44} , e ao módulo de cisalhamento, C_{66} . Portanto, o módulo C_{11} pode ser muitas vezes negligenciado em análises de deformações da rede. O módulo C_{66} descreve a deformação de um conjunto de linhas de fluxo na direção do campo aplicado mas deixando a seção transversal deste conjunto constante. C_{44} descreve uma deformação da rede na direção perpendicular ao campo. Os principais resultados desta teoria são que os módulos C_{11} e C_{44} são finitos e até mesmo aumentam quando se aproxima de H_{c2} e, contrariamente, o módulo de cisalhamento tende a zero à medida que o campo aplicado aproxima-se de H_{c2} . Isso mostra a tendência da rede de vórtices em exibir um caráter semelhante ao de um fluido na região próxima a H_{c2} em vez de manter sua rigidez. De fato, em supercondutores que exibem $\kappa \gg 1/\sqrt{2}$, nos quais o efeito de flutuações térmicas é muito proeminente, pode ocorrer a fusão da rede de vórtices em um líquido de vórtices, [27]. Assim, espera-se que as propriedades magnéticas e elétricas de um supercondutor mudem significativamente quando a linha de fusão é cruzada.

2.3 Supercondutividade em sistemas lameliformes

O estudo de sistemas lameliformes apresenta um caráter muito relevante, desde que a estrutura fortemente lamelar determina diferentes regimes de dimensionalidade do acoplamento supercondutor, os quais dependem da região de campo e temperatura. Assim, as teorias existentes que descrevem os materiais isotrópicos devem ser generalizadas para descrever a não homogeneidade espacial observada. Os sistemas mais destacados que apresentam estas características são os óxidos supercondutores de alta temperatura crítica e os sistemas multicamadas.

O primeiro modelo teórico que surge nesta linha é o apresentado por Lawrence-Doniach (LD) o qual é baseado na expansão da energia livre de Ginzburg-Landau. Esta teoria prevê uma temperatura T^* , na qual ocorre um brusco aumento no campo crítico superior, H_{c2} . Este primeiro modelo constitui uma interessante contribuição no sentido de compreender a física destes sistemas com dimensionalidade reduzida. Com o objetivo de resolver o problema da divergência de $H_{c2}(T^*)$, presente no modelo de Lawrence-Doniach, uma nova teoria, considerando os mecanismos de destruição da supercondutividade, foi proposta por Klemm, Luther e Beasley (teoria KLB). Esta teoria é baseada no formalismo microscópico desenvolvido por Gork'ov, abandonando-se o tratamento fenomenológico da teoria de campo médio proposto por LD. A seguir, são apresentados os modelos teóricos mencionados e suas implicações na supercondutividade nos sistemas lamelares.

2.3.1 Modelos teóricos em Transições Dimensionais

2.3.1.1 O modelo de Lawrence-Doniach

Neste modelo [29], assume-se que o material é constituído por um arranjo de supercondutores bi-dimensionais acoplados por tunelamento Josephson. O tunelamento ocorre através de camadas isolantes que separam os planos supercondutores. Desta forma é considerado um parâmetro de ordem bi-dimensional no contexto da teoria de Ginzburg-Landau (GL).

Como na teoria de GL convencional, é definido um funcional da energia livre para a pilha de camadas supercondutoras para o caso particular sem campo magnético aplicado [29, 30, 12]:

$$F = \sum_n \int \alpha |\psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4 + \frac{\hbar^2}{2m_{ab}} \left(\left| \frac{\partial \psi_n}{\partial x} \right|^2 + \left| \frac{\partial \psi_n}{\partial y} \right|^2 \right) + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4 + \frac{\hbar^2}{2m_c s^2} |\psi_n - \psi_{n-1}|^2 \quad (2.21)$$

Na equação acima, a soma em n corresponde ao número de camadas e a integral é realizada sobre a superfície dos planos supercondutores. O parâmetro s é a modulação do sistema e representa a soma da espessura da camada supercondutora com a espessura da camada isolante. Neste funcional existem dois pontos a destacar: o primeiro se refere às massas que são distintas de acordo com a orientação: m_{ab} (ou $m_{||}$) é a massa efetiva do elétron no plano supercondutor (assumindo que não existe anisotropia no plano) e m_c (ou $m_{\perp}$) é a massa efetiva do elétron na orientação perpendicular aos planos. O segundo ponto é a derivada na direção z ser considerada discreta devido ao número finito de camadas. Considerando o parâmetro de ordem dado por $\psi_n = |\psi_n| e^{i\varphi_n}$, e assumindo que o módulo quadrado do parâmetro de ordem é o mesmo para todas as camadas, pode-se reescrever o último termo na forma,

$$\frac{\hbar^2}{m_{\perp} s^2} |\psi_n|^2 [1 - \cos(\varphi_n - \varphi_{n-1})]$$

que torna claro a equivalência deste termo a uma energia de acoplamento Josephson (ΔF) entre as camadas. De acordo com a teoria de GL para uma junção Josephson,

$$\Delta F = \frac{\hbar}{2e} I_c (1 - \cos(\Delta\varphi)),$$

onde I_c é a corrente crítica da junção.

Através do procedimento padrão de minimização do funcional da energia livre em relação aos parâmetros ψ^* e $\mathbf{A}$, pode-se escrever as equações de GL para este caso. No caso simples apresentado acima a primeira equação de GL toma a forma:

$$\alpha\psi_n + \beta|\psi_n|^2\psi_n - \frac{\hbar^2}{2m_{ab}} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \psi_n - \frac{\hbar^2}{2m_c s^2} (\psi_{n+1} - 2\psi_n + \psi_{n-1}) = 0 \quad (2.22)$$

O último termo é a forma discreta da segunda derivada. Considerando o caso geral em que existe um vetor potencial magnético, então a equação de GL completa toma a forma:

$$\alpha\psi_n + \beta|\psi_n|^2\psi_n - \frac{\hbar^2}{2m_{ab}} \left(\nabla - i\frac{2e}{\hbar c} \mathbf{A} \right)^2 \psi_n - \frac{\hbar^2}{2m_c s^2} (\psi_{n+1} e^{-2ieA_z s/\hbar c} - 2\psi_n - \psi_{n-1} e^{2ieA_z s/\hbar c}) = 0. \quad (2.23)$$

Considerando que ∇ e $\mathbf{A}$ são vetores bi-dimensionais.

2.3.1.2 O limite anisotrópico de GL

A equação 2.23 apresenta uma complicação devido a derivada discreta na direção perpendicular aos planos. Entretanto, considerando um caso em que o comprimento de coerência é muito maior do que a modulação dos planos é possível aproximar a derivada discreta para uma derivada contínua. Ou seja,

$$\frac{\psi_n - \psi_{n+1}}{s} \simeq \frac{\partial\psi}{\partial z}$$

Neste limite, 2.23 pode ser reescrita em uma forma mais simples dada por:

$$\alpha\psi_n + \beta|\psi_n|^2\psi_n - \frac{\hbar^2}{2} \left(\nabla - i\frac{2e}{\hbar c} \mathbf{A} \right) \cdot \left(\frac{1}{m} \right) \cdot \left(\nabla - i\frac{2e}{\hbar c} \mathbf{A} \right) \psi = 0 \quad (2.24)$$

Agora ∇ e $\mathbf{A}$ são agora quantidades tridimensionais, e a anisotropia está simplesmente ligada ao tensor de massa recíproca ($1/m$). Os valores principais correspondentes são $1/m_a$, $1/m_b$ e $1/m_c$. Considerando novamente que a anisotropia nos planos seja desprezível, então $1/m_a = 1/m_b = 1/m_{ab}$. Sendo fraco o acoplamento entre as camadas então isso implica que $m_c \gg m_{ab}$.

Desde que o acoplamento é diferente nas duas orientações, o comprimento de coerência também irá apresentar valores diferentes. De acordo com o modelo de GL, ξ , fica dado por,

$$\xi_i^2 = \frac{\hbar^2}{2m_i |\alpha(T)|}$$

onde o índice i denota as direções a , b e c , quando $i = 1, 2$ e 3 , respectivamente.

Considerando que para um supercondutor isotrópico $H_{c2} = \Phi_0/2\pi\xi^2$, então a extensão para o caso anisotrópico implica que os campos críticos superiores apresentarão valores diferentes para cada orientação.

As equações 2.25 e 2.26 correspondem ao campo aplicado perpendicular e paralelamente ao plano ab .

$$H_{c2\perp} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}^2} \quad (2.25)$$

$$H_{c2\parallel} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}\xi_{\perp}} \quad (2.26)$$

Deste modo, observa-se que $H_{c2\parallel} \gg H_{c2\perp}$, desde que $\xi_{\parallel} \gg \xi_{\perp}$. O campo crítico inferior, por outro lado, apresenta comportamento oposto pois $H_{c1} \propto 1/\lambda^2$.

Para referência futura, são definidas as seguintes relações para o fator de anisotropia γ :

$$\gamma \equiv \left(\frac{m_{\perp}}{m_{\parallel}}\right)^{1/2} = \frac{\lambda_{\perp}}{\lambda_{\parallel}} = \frac{\xi_{\parallel}}{\xi_{\perp}} = \left(\frac{H_{c2\parallel}}{H_{c2\perp}}\right) = \left(\frac{H_{c1\perp}}{H_{c1\parallel}}\right) \quad (2.27)$$

2.3.1.3 Crossover para o comportamento bi-dimensional

A medida em que se aproxima de T_c , o comprimento de coerência aumenta de acordo com a lei [12],

$$\xi(T) = \xi_0 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{-\frac{1}{2}} \quad (2.28)$$

de modo que este será sempre grande o suficiente de modo que a aproximação de GL seja válida para multicamadas. Porém, quando a temperatura é reduzida, o comprimento de coerência vai diminuindo e caso o valor do comprimento de coerência seja da ordem ou menor do que a distância interplanar, a aproximação de GL falha, abaixo de uma certa temperatura T^* . Quando é reduzida a temperatura novos comportamentos são esperados quando a aproximação contínua 3D é substituída pelo comportamento bi-dimensional das camadas individuais. De acordo com o modelo de LD, o campo crítico superior diverge na temperatura T^* , para o qual $\xi(T^*) = s/\sqrt{2}$. Abaixo desta temperatura, cada camada é considerada como um supercondutor bi-dimensional de espessura zero, tendo um campo crítico infinito. Certamente esta divergência não é física, mas está relacionada com a limitação da teoria em não considerar os mecanismos de quebra de pares de Cooper.

Para entender a origem da divergência em $T = T^*$, considera-se a equação de GL dada por 2.23, a qual apresenta a verificação discreta do parâmetro de ordem. Para determinar H_{c2} a partir desta equação, obtém-se a versão linearizada de 2.23 com o mais baixo autovalor para a determinação do maior valor do

campo magnético. Tomando o campo na direção y e considerando o *gauge* tal que $A_z = Hx$, então a equação 2.23 toma a forma [12],

$$-\frac{d^2\psi}{dx^2} + \frac{2m_{ab}}{m_c s^2} \left[1 - \cos \frac{2\pi H s x}{\Phi_0} \right] \psi = \frac{1}{\xi_{ab}^2} \psi. \quad (2.29)$$

A equação 2.29 corresponde a uma equação de Schrödinger para um movimento eletrônico em um potencial com uma componente periódica e outra componente harmônica. Para baixos campos aplicados, a equação 2.29 se reduz a uma equação semelhante à do oscilador harmônico e o resultado da teoria de GL anisotrópica é verificada. Para campos mais altos é necessário explorar as soluções da equação acima que representem um acoplamento mais fraco entre as camadas. Neste caso, o problema de autovalores dado pela equação 2.29, corresponde a uma partícula em um potencial periódico. Uma expansão usando teoria de perturbação para H grande permite obter a seguinte solução para o campo crítico superior [29, 30, 12]:

$$H_{c2,ab}(T) \approx \frac{[(\Phi_0/2\pi s^2)(m_{ab}/m_c)]^{1/2}}{[1 - s^2/2\xi_c^2(T)]^{1/2}}. \quad (2.30)$$

A equação acima mostra que quando a temperatura é reduzida e $H_{c2\parallel}(T)$ aumenta, existe uma temperatura T^* definida pela relação,

$$\xi_{\perp}(T^*) = s/\sqrt{2} \quad (2.31)$$

na qual o campo crítico $H_{c2\parallel}(T)$ diverge. Este resultado pode ser interpretado da seguinte forma: Para $T^* < T < T_c$, o comprimento de coerência $\xi_{\perp}(T)$ estende-se sobre muitas camadas e o comportamento previsto pela aproximação anisotrópica de GL é válido. Para $T < T^*$, onde $\xi_{\perp}(T^*) < s/\sqrt{2}$, os núcleos dos vórtices podem efetivamente ajustar-se entre as camadas supercondutoras suprimindo os efeitos orbitais. Neste caso a supercondutividade fica confinada nos planos supercondutores.

2.3.1.4 A Teoria de Klemm-Luther-Beasley (KLB)

O modelo de LD considera os compostos lameliformes como uma pilha de supercondutores 2D acoplados via tunelamento Josephson (obedecendo as equações de GL). A principal falha neste modelo é considerar apenas os efeitos orbitais dos elétrons, de modo que para temperaturas abaixo de T^* , o campo crítico $H_{c2\parallel}$ apresenta uma divergência. Isso ocorre devido à supressão dos efeitos orbitais abaixo de T^* , desde que neste caso a supercondutividade fica confinada nas camadas supercondutoras. Em 1974, R. Klemm, A. Luther e M. Beasley (KLB) [31], apresentaram um cálculo mais realístico do comportamento do campo crítico em baixas temperaturas, o qual não apresenta o problema da divergência de $H_{c2\parallel}$. Para isso, os autores fizeram os cálculos usando o formalismo microscópico da teoria de Gor'kov, incluindo os efeitos de quebra de pares devido ao paramagnetismo de Pauli e ao espalhamento spin-órbita.

A teoria KLB apresenta três parâmetros principais:

τ_{so} : este parâmetro mede a intensidade dos efeitos do espalhamento spin-órbita sobre o campo crítico superior. τ_{so} é a taxa de espalhamento spin-órbita, e para valores maiores de τ_{so} mais proeminentes são estes efeitos. Estes ocorrem devido à interação dos elétrons do condensado com momentos magnéticos da amostra. Isto pode modificar o estado do elétron não permitindo que o mesmo participe do condensado;

α : este parâmetro mede a intensidade dos efeitos do paramagnetismo de Pauli. Desde que os campos críticos são muito elevados no regime 2D, é possível que seja atingido o limite paramagnético de Clogston, onde o campo aplicado pode alinhar os spins dos elétrons e deste modo destruir os pares de Cooper. Isso promove uma redução na densidade de pares de Cooper do condensado e com isso a energia livre do estado supercondutor. Conseqüentemente, o campo $H_{c2||}$ é diminuído. Quanto maior o valor de α mais intenso é o efeito paramagnético;

r : este parâmetro mede o acoplamento entre as camadas supercondutoras. $r \gg 1$ implica em forte acoplamento entre as camadas e $r \ll 1$ implica em um estado desacoplado das mesmas.

Os resultados desta teoria são apresentados na figura 2.2. A figura 2.2a apresenta a dependência de $H_{c2||}$ com a temperatura, para diferentes valores do espalhamento spin-órbita e paramagnetismo de Pauli, considerando um acoplamento moderado entre as camadas ($r \approx 1$). As curvas traço-ponto correspondem a efeitos fracos do paramagnetismo de Pauli ($\alpha = 1$) e mostram que as curvas tendem a exibir o comportamento previsto pelo modelo LD quando $\tau_{so}T_c$ tende a zero. Segundo os autores da teoria, a característica mais interessante destas curvas são os altos valores de $H_{c2||}$ para os sistemas lameliformes quando comparados aos supercondutores ordinários (3D) do tipo II, com os mesmos valores de $\tau_{so}T_c$ e α . Observa-se que existe uma redução sensível nos valores de $H_{c2||}(0)$ quando os efeitos de espalhamento spin-órbita são mais fortes conforme mostra a figura 2.2a. Na figura 2.2b, são mostrados algumas curvas variando-se a constante de acoplamento r , e a questão do aumento de $H_{c2||}$ para o caso lameliforme fica bem evidente. A curva $r = 0$ exibe valores de campo crítico muito superiores ao caso de um sistema com acoplamento moderado, quando $r = 1$.

Um característica essencial das curvas de H_{c2} é a mudança da forma da curva, de uma região aproximadamente linear ($T > T^*$) para uma variação proporcional a $T^{1/2}$ ($T < T^*$). Esta é a assinatura da transição dimensional observada em sistemas multicamadas e outros compostos lamelares.

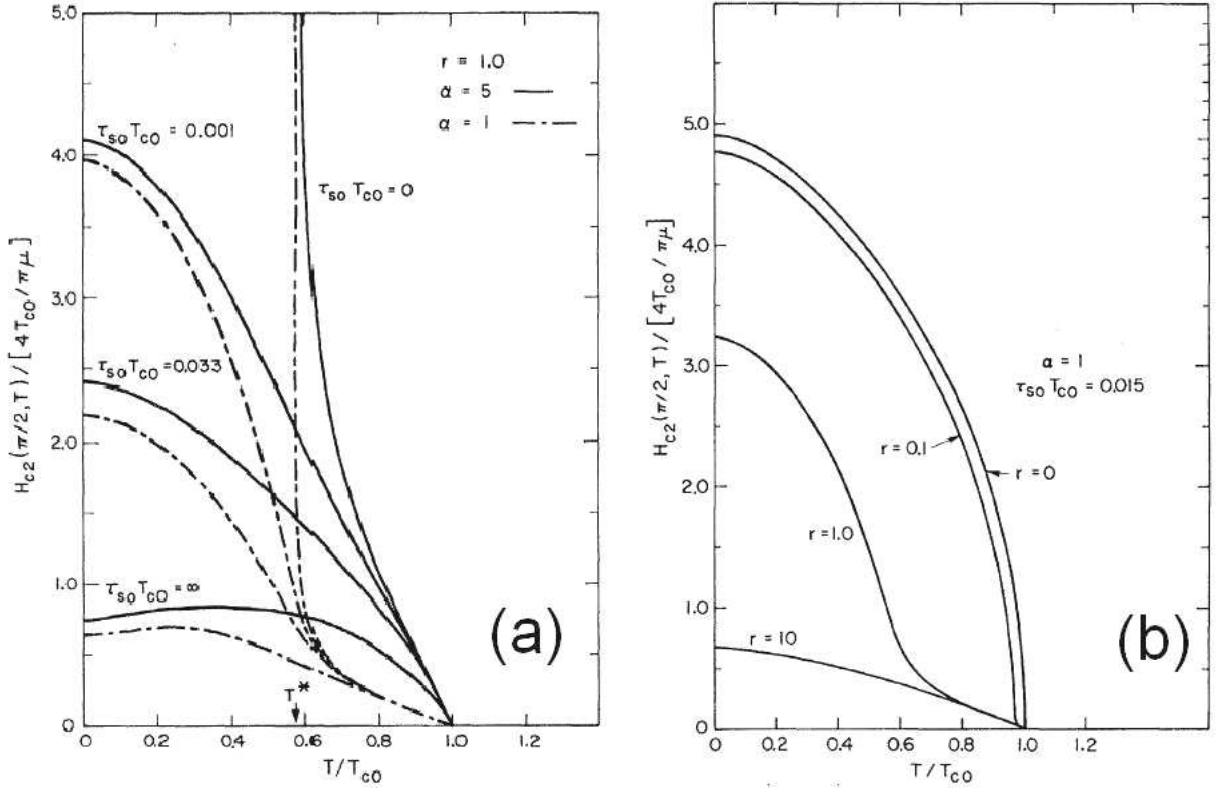


Figura 2.2: (a) Campo reduzido em função da temperatura para várias intensidades do paramagnetismo de Pauli e espalhamento spin-órbita. (b) Gráfico do campo reduzido em função da temperatura reduzida para $\alpha = 1$, $\tau_{so} = 0,015$ para vários valores de r . Nota-se que o campo crítico é muito elevado para um sistema desacoplado ($r = 0$) comparado ao caso de forte acoplamento, $r = 10$ [31].

2.3.2 Resultados Experimentais em transições dimensionais

Com a proposição dos modelos teóricos, descrevendo as transições dimensionais no acoplamento supercondutor, muitos trabalhos experimentais verificaram claramente a mudança no comportamento de $H_{c2||}(T)$. Na figura 2.3a é mostrado os dados de $H_{c2||}(T)$ obtidos para um sistema multicamadas de Nb/Ge [32]. Um ajuste dos dados com a teoria KLB foi realizado e nota-se a boa concordância deste ajuste com os pontos experimentais. O campo $H_{c2\perp}$ também é mostrado e o mesmo apresenta um comportamento linear. Além disso, existe um alto grau de anisotropia o qual aumenta com o aumento da espessura da camada de Ge. Para uma separação relativamente grande ($D_{Ge} \approx 50\text{\AA}$) o acoplamento é bidimensional com $H_{c2||}(T) \sim (1 - T/T_c)^{1/2}$. Isto confirma explicitamente que $\xi_{\perp}(T) < D_{Nb}$ para todo o intervalo de temperatura e que a supercondutividade nas camadas de Nb é 2D. Neste caso a temperatura característica $T^* \approx T_c$, demonstrando que o acoplamento entre as camadas é aproximadamente inexistente. Por outro

lado, quando as camadas de Ge são muito finas ($D_{\text{Ge}} \approx 7\text{\AA}$) as camadas de Nb acoplam fortemente e T^* não pode ser definido. Isto significa que $\xi_{\perp}(T) > D_{\text{Nb}}$ para todas as temperaturas e um comportamento 3D é observado. Isto é verificado pelo comportamento $H_{c2||}(T) \sim (1 - T/T_c)$ próximo de T_c observado para esta amostra. Para valores de espessuras intermediárias ($D_{\text{Ge}} \approx 35\text{\AA}$), T^* está situado em uma temperatura observável permitindo verificar os dois regimes de acoplamento, precisamente em $T^* \approx 0,98T_c$. Para $T > T^*$ o comportamento de $H_{c2||}$ é linear e para $T < T^*$ o comportamento segue $H_{c2||}(T) \sim (1 - T/T_c)^{1/2}$. Na figura 2.3b, é apresentado um diagrama $H \times T$ para um sistema V/Ag [33] o qual também apresenta uma transição dimensional de forma semelhante ao caso do sistema Nb/Ge mostrado na figura 2.3a.

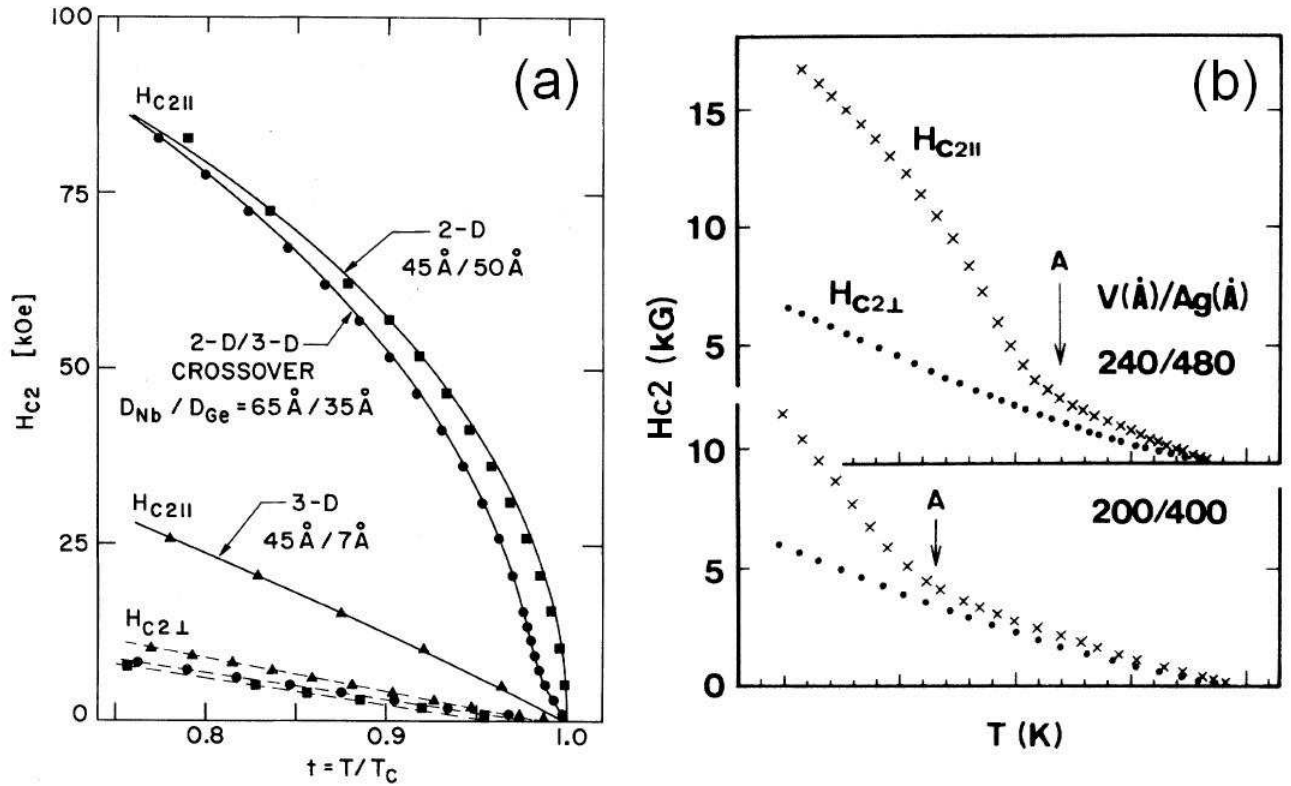


Figura 2.3: Resultados experimentais evidenciando a transição dimensional. (a) Medidas obtidas em um sistema multicamadas de Nb/Ge [32]. As linhas sólidas são ajustes usando a teoria KLB. (b) Resultados para um sistemas V/Ag [33], mostrando também uma transição dimensional.

2.3.3 O Estado Misto em Sistemas Lameliformes

No contexto da dinâmica dos vórtices a estrutura fortemente lamelar introduz novas características no comportamento da rede de Abrikosov. Em ambos os sistemas (óxidos de alta temperatura e sistemas multicamadas) as camadas supercondutoras são intercaladas por camadas de material normal, as quais

atuam como barreiras de potencial contra o tunelamento dos pares de Cooper entre os planos. Caso o acoplamento entre as camadas supercondutoras seja muito fraco comparado à energia térmica, as linhas de fluxo comportam-se como “panquecas de vórtices”, que interagem fortemente entre si no interior de uma camada mas fracamente com as panquecas da camada vizinha. O aprisionamento dos vórtices torna-se muito difícil neste regime, desde que o aprisionamento de uma panqueca em uma das camadas não garante o aprisionamento das panquecas contidas nas camadas vizinhas.

2.3.3.1 Fases do Estado Misto

Os vórtices em sistemas lamelares podem assumir um comportamento muito rico, variando desde uma simples rede de Abrikosov ordenada e tridimensional até um sistema composto por um líquido de panquecas de vórtices. Isto pode ser explicado levando-se em consideração a competição entre quatro energias associadas ao supercondutor [27, 34].

- Energia Térmica, a qual favorece a formação de um líquido de vórtices ou panquecas;
- Energia de Interação entre vórtices, favorecendo uma rede perfeita de vórtices;
- Energia de *pinning*, a qual promove a formação de uma fase amorfa ou sólido vítreo de vórtices;
- Energia de acoplamento entre as camadas supercondutoras, que controla a formação de uma rede de vórtices 3D ou um sistema composto por panquecas fracamente interagentes.

As quatro energias citadas apresentam a mesma ordem de magnitude, conferindo uma rica variedade de fases sólidas e líquidas dos vórtices. Os parâmetros associados com estas energias são acessíveis experimentalmente permitindo uma investigação sistemática do estado misto. A energia térmica pode ser controlada pela temperatura em que amostra está submetida; a energia de interação pode ser controlada pela introdução de mais ou menos vórtices na amostra com o aumento do campo magnético aplicado; a energia de *pinning* pode ser controlada pela introdução de defeitos na amostra (e.g. irradiação no caso dos óxidos de alta temperatura) e, finalmente, a energia de acoplamento pode ser variada pela troca do material normal que fica entre as camadas supercondutoras.

Na figura 2.4, é apresentado um diagrama de fases para o $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212), na ausência de *pinning*. É importante considerar aqui que embora o diagrama seja para um material específico, as características qualitativas do mesmo são compartilhadas por todos os materiais que apresentam características lamelares, inclusive os sistemas multicamadas. No canto superior direito da figura 2.4, é mostrado um diagrama esquemático da estrutura cristalina do Bi2212. É considerado que o campo é aplicado paralelamente ao eixo *c*, perpendicular aos planos supercondutores de CuO_2 . Entre estes planos estão as camadas

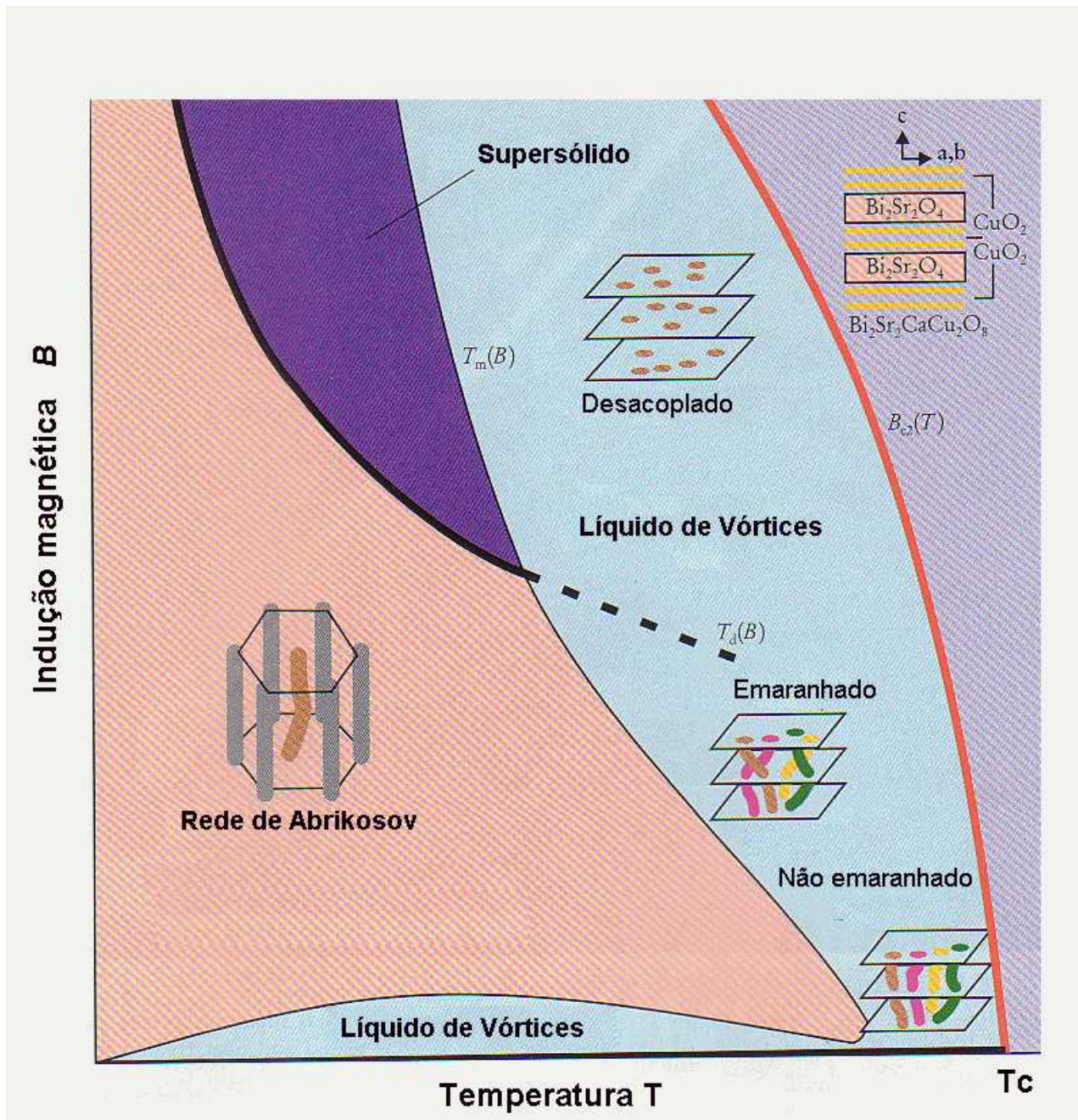


Figura 2.4: Diagrama de fases de equilíbrio para uma amostra de Bi2212 com o campo perpendicular aos planos de CuO_2 . A estrutura lamelar com os planos de CuO_2 , intercalados pelas camadas isolantes de $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{O}_4$, são mostrados no canto superior direito da figura. Os regimes, emaranhado, não-emaranhado e desacoplado, dos vórtices no estado líquido, são mostrados. A fase Meissner é muito pequena e não é mostrada, pois estaria comprimida na linha horizontal $B \approx 0$ [34].

isolantes de $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{O}_4$. Esta disposição confere a anisotropia uniaxial característica deste composto. Na figura 2.4 nota-se que a rede de Abrikosov está restrita a uma região abaixo da linha de fusão dos vórtices, denotada por $T_m(B)$. A linha vermelha $B_{c2}(T)$ separa a região supercondutora da fase normal, de modo que ambas as linhas $T_m(B)$ e $B_{c2}(T)$ delimitam um novo regime de “líquido de vórtices”, constituído por vórtices flexíveis e emaranhados entre si. Existe ainda uma linha de desacoplamento $T_d(B)$, acima da qual o caráter discreto das camadas supercondutoras passa a ser significativo. Acima de $T_d(B)$ a energia térmica supera a energia de acoplamento entre as camadas, causando a segmentação dos vórtices na forma de panquecas. Desta forma os vórtices passam de um regime 3D para um 2D¹. Na região azul claro, no canto superior direito da figura 2.4, é mostrado o aspecto dos vórtices em um material supercondutor após ser cruzada a linha $T_d(B)$. Assim como uma rede composta de átomos e moléculas apresenta defeitos, uma rede vórtices pode também apresentar defeitos como vacâncias e interstícios. Entretanto, no caso dos vórtices esses defeitos pode mudar em número e forma, dependendo do campo magnético e temperatura, o que indica a extensão da linha $T_d(B)$ na região sólida do diagrama. Esta linha, juntamente com a linha de fusão $T_m(B)$, delimita a região roxa no diagrama denominada “supersólido”. Para uma temperatura fixa, aumentando-se o campo aplicado desde zero, o número de defeitos na rede de vórtices vai aumentando até o ponto onde é cruzada a linha $T_d(B)$, acima da qual a rede apresenta um caráter 2D. Neste trabalho não será considerado esta região do diagrama nas análises e, portanto, não serão mencionados maiores detalhes a respeito. Na região azul claro do diagrama da figura 2.4 é possível identificar duas regiões do líquido de vórtices: sem emaranhamento e com emaranhamento. Na fase líquida uma linha de fluxo pode sofrer um desvio na direção perpendicular ao campo aplicado, ou seja, existe uma curvatura das vórtices. Quando esta curvatura é maior do que a distância entre eles, o sistema de vórtices passa de um regime não emaranhado para um emaranhado.

¹No capítulo 4, figura 5.6, é determinada uma linha característica para uma das amostras estudadas (NiNb-A). Conforme será discutido, possivelmente esta linha possa estar associada ao desacoplamento de vórtices.

Sistemas Supercondutores/Ferromagnéticos (S/F)

Embora os fenômenos da supercondutividade e ferromagnetismo sejam considerados em geral antagônicos, é possível obtê-los separados espacialmente em uma escala nanométrica. Isto é obtido artificialmente em sistemas multicamadas. Estes sistemas apresentam a vantagem de ser possível controlar a espessura e a sequência das camadas ferromagnéticas (F) e supercondutoras (S) durante a fabricação. Quando as camadas F e S estão em contato, a interdifusão dos pares de Cooper através da interface promove efeitos de supressão da supercondutividade. Este fenômeno, chamado efeito de proximidade [35], tem sido intensivamente estudado para o caso em que o material normal (N) é não-magnético [36]. No caso em que o material normal é ferromagnético, existe ainda um efeito adicional devido ao campo de troca da camada F . Este campo tende a alinhar os spins dos elétrons em um par de Cooper, fazendo com que o efeito de quebra de pares seja mais intenso do que no caso em que o material normal é não magnético. Reciprocamente, o ferromagnetismo das camadas F também pode ser reduzido devido à difusão dos elétrons do material supercondutor, que deprimem a interação de troca entre os elétrons F . Apesar do aumento das pesquisas em sistemas S/F nos últimos anos, até o momento o efeito de proximidade entre estes materiais ainda não foi completamente entendido, além de certas previsões teóricas não terem sido verificadas consistentemente, como é o caso do acoplamento de fase π entre duas camadas supercondutoras através de uma camada ferromagnética (seção 2.1.1).

Os ordenamentos supercondutor e ferromagnético apresentam escalas de comprimento muito distintas. A supercondutividade apresenta um comprimento de correlação da ordem de centenas de Angstroms para supercondutores convencionais, enquanto que o ferromagnetismo manifesta-se em escalas de comprimento muito mais curtas, tipicamente menores do que 20 Å. Devido aos efeitos de proximidade, não é possível trabalhar com filmes cujas camadas de S ou F sejam muito espessas, pois neste caso ou o ferromagnetismo ou a supercondutividade é fortemente suprimida. Sendo assim, é necessário que as espessuras das camadas

estejam no limite de um filme fino. Por esta razão, efeitos de superfície e tamanho finito devem ser considerados em qualquer estudo que seja realizado neste sistema. Isso torna mais complexa a análise dos resultados experimentais obtidos em sistemas S/F [3, 37].

Até o momento os estudos sobre os efeitos de proximidade [3, 37] têm sido conduzidos no sentido de verificar como afetam a temperatura crítica T_c e o campo crítico superior H_{c2} . Os efeitos de dimensionalidade do acoplamento supercondutor podem ser verificados através comportamento de $H_{c2}(T)$, conforme foi discutido no capítulo 1. No caso da temperatura crítica, tem sido previsto que a mesma apresenta uma variação não-monotônica em função da espessura da camada F .

3.1 Estudos sobre a Temperatura Crítica de sistemas (S/F)

Uma junção π é uma junção Josephson em que a diferença de fase ($\Delta\phi$) entre as duas funções de onda dos pares de Cooper é $\Delta\phi = \pi$. Em sistemas magnéticos, este tipo de junção foi previsto pela primeira vez por Bulaevskii *et al.*[38]. Em 1992 Buzdin *et al.*[39, 40], argumentaram que um acoplamento deste tipo poderia ocorrer em sistemas supercondutores com impurezas magnéticas, mas a densidade de impurezas necessárias deveria ser tal que as interações entre elas não poderia ser desprezada. Entretanto foi mostrado que este acoplamento poderia ocorrer somente para determinadas espessuras da camada ferromagnética t_F . Baseado neste trabalho, Radović *et al.*[41] mostraram que este tipo de acoplamento poderia ocasionar oscilações na temperatura crítica do filme, quando a espessura da camada ferromagnética fosse variada. Estas previsões deram origem a uma grande quantidade de trabalho experimental, com o objetivo de verificar a oscilação da temperatura crítica.

Um dos primeiros trabalho neste sentido, foi realizado por Strunk *et al.*, em tricamadas Nb/Gd/Nb e sistemas multicamadas de Nb/Gd, crescidas pela técnica MBE (*molecular beam epitaxy*) [10]. Observou-se que a curva T_c vs. t_F , apresentava uma queda abrupta com o aumento da espessura da camada ferromagnética, um platô no intervalo de 10 a 20Å, e em seguida um queda abrupta novamente, conforme mostrado na figura 3.1a. Não foram observadas oscilações da T_c que se mostrou menos sensível à variação da camada ferromagnética com o aumento da espessura da camada de Nb, como pode ser visto na figura 3.1a. Os autores explicaram este comportamento de $T_c(t_{Gd})$ pela mudança no mecanismo de quebra de pares devido à transição paramagnética-ferromagnética das camadas de gadolínio com o aumento de t_{Gd} . Com o crescimento inicial das ilhas de gadolínio, a ordem ferromagnética de longo alcance foi estabelecida somente para $t_{Gd} \geq 20$ Å. Um outro grupo (Jiang *et al.*, [42, 43]) cresceu amostras de Nb/Gd, usando *magnetron sputtering*, e observaram um comportamento oscilatório de T_c com a espessura das camadas de gadolínio (figura 3.1b). Neste trabalho foi concluído que a dependência de T_c observada constituía a pri-

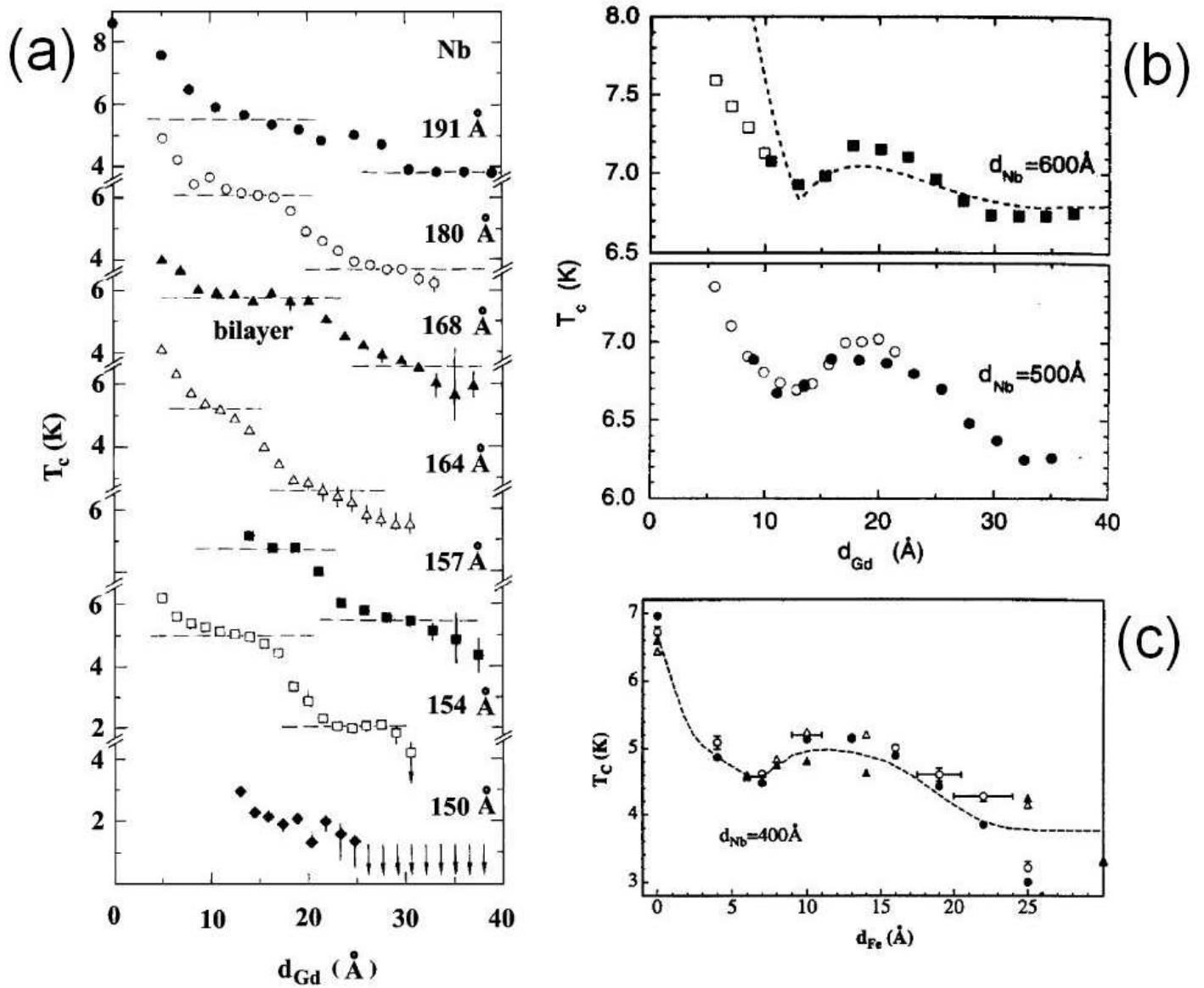


Figura 3.1: (a) Temperatura de transição supercondutora em função da espessura da camada de gadolínio para várias tricamadas de Nb/Gd/Nb. Observa-se que a temperatura de transição vai tornando-se insensível à variação de t_{Gd} , a medida que aumenta-se a espessura da camada de Nb [10]. (b) Dependência oscilatória de T_c em função da espessura da camada de Gd obtida por Jiang *et al.*, [42, 43]. (c) Dependência de T_c vs. espessura da camada de Fe obtida por Müghe *et al.*, [44]. Este comportamento foi explicado pela existência de uma camada não magnética, formada pela interdifusão dos átomos de Nb e Fe na interface. Nesta figura foi usada a notação d_{Gd} e d_{Fe} , para as espessuras das camadas de Gd e Fe, respectivamente.

-meira evidência experimental do acoplamento π , previsto teoricamente. Posteriormente, Müghe *et al.*[44] observaram que a temperatura crítica de sistemas tricamadas Fe/Nb/Fe apresentava uma dependência não monotônica de T_c com a espessura da camada ferromagnética, para um dado valor de t_{Nb} . Esta dependência é muito semelhante à observada no trabalho de Jiang *et al.*, conforme indicado na figura 3.1c. Desde que é necessário duas camadas supercondutoras para que seja possível a existência de acoplamento Josephson, os dados apresentados na figura 3.1c não podem ser interpretados em termos da teoria de Radović *et al.*[41]. Concluiu-se que este efeito ocorria devido à presença de uma *camada intermediária* não magnética formada com a interdifusão dos átomos de Nb e Fe. Na interface, os íons do Fe seriam dissolvidos em parte da camada de Nb, perdendo suas propriedades magnéticas devido à mistura dos elétrons d do Fe com os elétrons de condução do material supercondutor. Como resultado, a interação repulsiva destes elétrons acaba enfraquecendo a supercondutividade. Este mecanismo de enfraquecimento da interação de pareamento é diferente do usual *spin-flip* observado com a introdução de impurezas magnéticas, onde os elétrons que formam o par de Cooper (singleto) alinham os spins na direção do campo de troca. Além disso, o mecanismo de interdifusão predomina quando a espessura do material magnético é muito pequena. Com o aumento da espessura da camada de Fe, a camada intermediária pode ser magnetizada, reduzindo a hibridização dos elétrons d provenientes dos íons dissolvidos com os elétrons de condução do Nb. Assim, ocorre uma redução dos efeitos de enfraquecimento da interação de pareamento e um conseqüente aumento T_c . Aumentado-se ainda mais o valor de t_{Fe} , o ferromagnetismo pode ser nucleado nesta camada dando origem a uma forte interação de troca, reduzindo a temperatura crítica novamente. Os três diferentes comportamentos apresentados pela camada intermediária podem dar origem ao comportamento observado na figura 3.1c.

Dados da literatura revelam que o comportamento da temperatura crítica depende do processo em que os filmes foram crescidos (MBE ou por *magnetron sputtering*). Isso se deve às peculiaridades do comportamento de T_c estarem ligadas à existência da camada intermediária, devido a interdifusão dos átomos na interface entre as camadas. A espessura da camada, por sua vez, depende da condição e métodos de preparação. A existência da camada intermediária complica as análises da variação de T_c e, deste modo, não se pode considerar que esteja ocorrendo um efeito de proximidade genuíno. Assim foi necessário construir uma teoria que considerasse a transparência finita da interface, e esta foi proposta por Golubov [45] e Tagirov [46]. O ajuste dos dados experimentais para um sistema multicamadas, com esta teoria, é muito satisfatório conforme mostrado na figura 3.2, para um sistema Fe/Pb.

Também foram realizados estudos para verificar a dependência com a espessura da camada supercondutora. Todos os resultados, teóricos e experimentais, compartilham o mesmo comportamento da curva

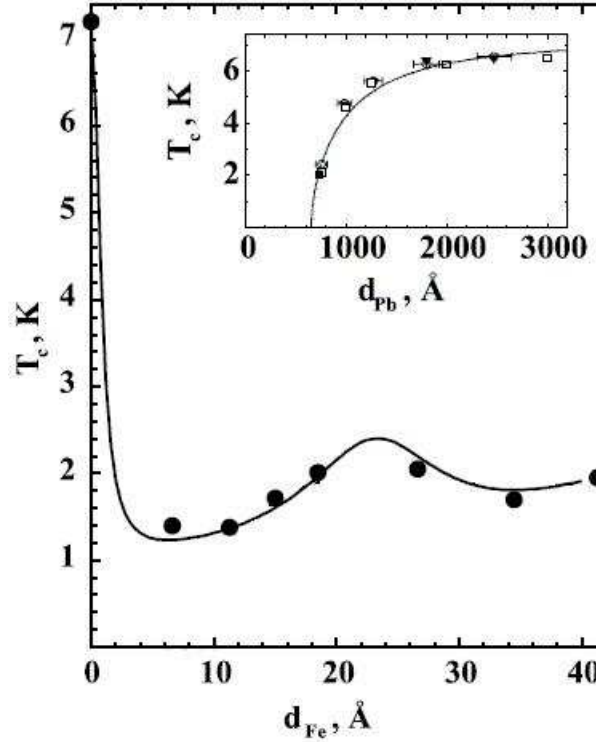


Figura 3.2: Dependência de T_c com a espessura da camada de Fe, d_{Fe} , para um valor da camada de chumbo $d_{\text{Pb}} = 730 \text{ \AA}$. [47]. A linha cheia representa um ajuste com a teoria de Tagirov [46]. No detalhe é apresentada a redução monotônica de T_c com a redução da espessura da camada de chumbo, para uma espessura fixa de Fe, igual a $30 \text{ \AA}$.

$T_c(t_S)$, semelhante ao mostrado no detalhe da figura 3.2, onde vê-se que a temperatura crítica é reduzida monotonicamente com a redução da espessura da camada supercondutora.

3.2 Estudos sobre o Campo Crítico Superior de sistemas (S/F)

O estudo do campo crítico superior em função da temperatura, $H_{c2}(T)$, permite verificar a dimensionalidade do acoplamento supercondutor. Quando as camadas S apresentam um acoplamento tridimensional, observa-se que o comportamento de $H_{c2||}(T)$ é linear. Com a redução da temperatura, o comprimento de coerência vai diminuindo de modo que para uma dada temperatura T^* , a supercondutividade fica confinada nos planos supercondutores e tem-se a transição para um regime bidimensional. Os primeiros modelos teóricos que descreveram este tipo de transição foram baseados na teoria de GL anisotrópica, tratando o sistema lameliforme como um supercondutor anisotrópico. Estas teorias foram discutidas no capítulo 1. Em sistemas S/F , os efeitos de quebra de pares de Cooper que limitam o valor de H_{c2} são mais

proeminentes devido ao campo de troca das camadas F . Neste caso, uma teoria satisfatória para explicar o comportamento de $H_{c2||}(T)$ deve levar estes efeitos em consideração. Até o momento não existe uma teoria que descreva a transição dimensional em sistemas S/F . Uma contribuição importante no sentido de compreender os efeitos do campo de troca sobre o campo crítico foi dada por Radović [48]. Esta teoria permite determinar as equações para o campo crítico em função da temperatura, para as orientações paralela e perpendicular às camadas do filme. Os efeitos do campo de troca das camadas F são incorporados em um parâmetro de quebra de par ρ^* , o qual assume valores complexos. Com o ajuste dos pontos experimentais de T_c vs. t_S é possível determinar completamente o valor de ρ^* . Neste modelo a temperatura crítica do sistema é dada pela equação:

$$\ln \left(\frac{T_c}{T_{c0}} \right) = \Psi \left(\frac{1}{2} \right) - \text{Re} \Psi \left(\frac{1}{2} + \rho^* \frac{T_c}{T_{c0}} \right) \quad (3.1)$$

onde Ψ é a função digama, e T_{c0} é a temperatura crítica do supercondutor macroscópico tridimensional. O parâmetro de quebra de par é determinado pelas três equações 3.2.

$$\begin{aligned} \varphi \tan(\varphi_0) &= (1 + i) \frac{t_S / \xi_S}{\epsilon} \\ \varphi_0 &= \left. \frac{k_s t_S}{2} \right|_{T=T_c} \end{aligned} \quad (3.2)$$

$$k_s^2 = \frac{2\rho^*}{\xi_S^2}$$

Estas equações mostram que a temperatura crítica depende de t_S , do comprimento de coerência ξ_S (que está relacionado ao comprimento de coerência de GL por $\xi_S = 2\xi_{GL}(0)/\pi$) e do parâmetro do material $\epsilon = \xi_F / \eta \xi_S$. Aqui ξ_F é a penetração dos pares de Cooper na camada ferromagnética e η tem origem na condição de contorno generalizada de de Gennes e Werthamer, que deve ser satisfeita na interface pelas amplitudes das funções de onda dos pares, F_S e F_F , nas camadas S e F , respectivamente:

$$\frac{\partial}{\partial x} \ln F_S = \eta \frac{\partial}{\partial x} \ln F_F.$$

No limite sujo, com espalhamento especular dos pares na interface, $\eta = \sigma_F / \sigma_S$ é a razão das condutividades do estado normal dos metais, S e F . Os campos críticos podem ser calculados de maneira similar, introduzindo os valores correspondentes de ρ^* . Para o campo perpendicular às camadas,

$$\rho^*(T) = \rho^*(T_c) + \frac{\pi H_{c2\perp}}{\Phi_0} \xi_S^2. \quad (3.3)$$

onde Φ_0 é o quantum de fluxo.

Na presença de um campo paralelo aplicado, é suposto que as camadas supercondutoras são finas o suficiente de modo que nenhum vórtice seja nucleado nas mesmas. Neste caso a equação para o campo paralelo às camadas é dada por:

$$\rho^*(T) = \rho^*(T_c) + \frac{g(\varphi_0)}{24\phi_0^2} (2\pi H_{c2||} t_S \xi_S) \quad (3.4)$$

com g sendo uma função dependente apenas de φ , dada por,

$$g(\varphi_0) = 1 - \frac{3}{2\varphi_0^2} + \frac{3 + 2\varphi_0 \tan \varphi_0}{\varphi_0^2 + \varphi_0 \tan \varphi_0 + (\varphi_0 \tan \varphi_0)^2}$$

Com estas equações é possível descrever muitos dados experimentais. Com as equações 3.1 e 3.2, é possível obter o único parâmetro livre ϵ , desde que ξ_S e T_{c0} podem ser, em geral, determinados independentemente com um filme espesso do material S . Assim para um dado valor de temperatura, diferente de T_c , o parâmetro de quebra de par ρ^* pode ser calculado usando a equação 3.1 e substituindo-se em 3.3 e 3.4 determina-se o valor do campo crítico superior para ambas as direções. Este foi o procedimento adotado no trabalho de Verbanck *et al.*[9], que permitiu uma ótima concordância dos dados experimentais de H_{c2}

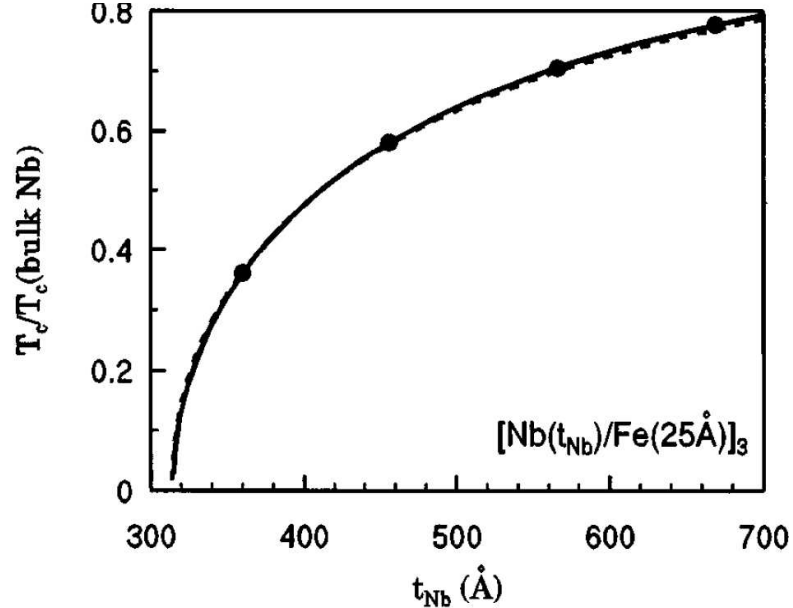


Figura 3.3: Dados de T_c/T_{c0} vs. t_{Nb} obtidos por Verbanck *et al.*[9], para um sistema multicamadas de Nb/Fe. A linha tracejada é um ajuste com a teoria de Radovi'c, usando $\epsilon = 3,77$ e tomando o valor de $\xi_S = 82\text{\AA}$, obtido com um único filme fino de Nb com $2000\text{\AA}$ de espessura. A linha sólida é um ajuste com a mesma teoria porém tomando o comprimento de coerência como parâmetro livre juntamente com ϵ . Neste caso, os valores obtidos foram iguais a $\epsilon = 3,36$ e $\xi_S = 77,8\text{\AA}$.

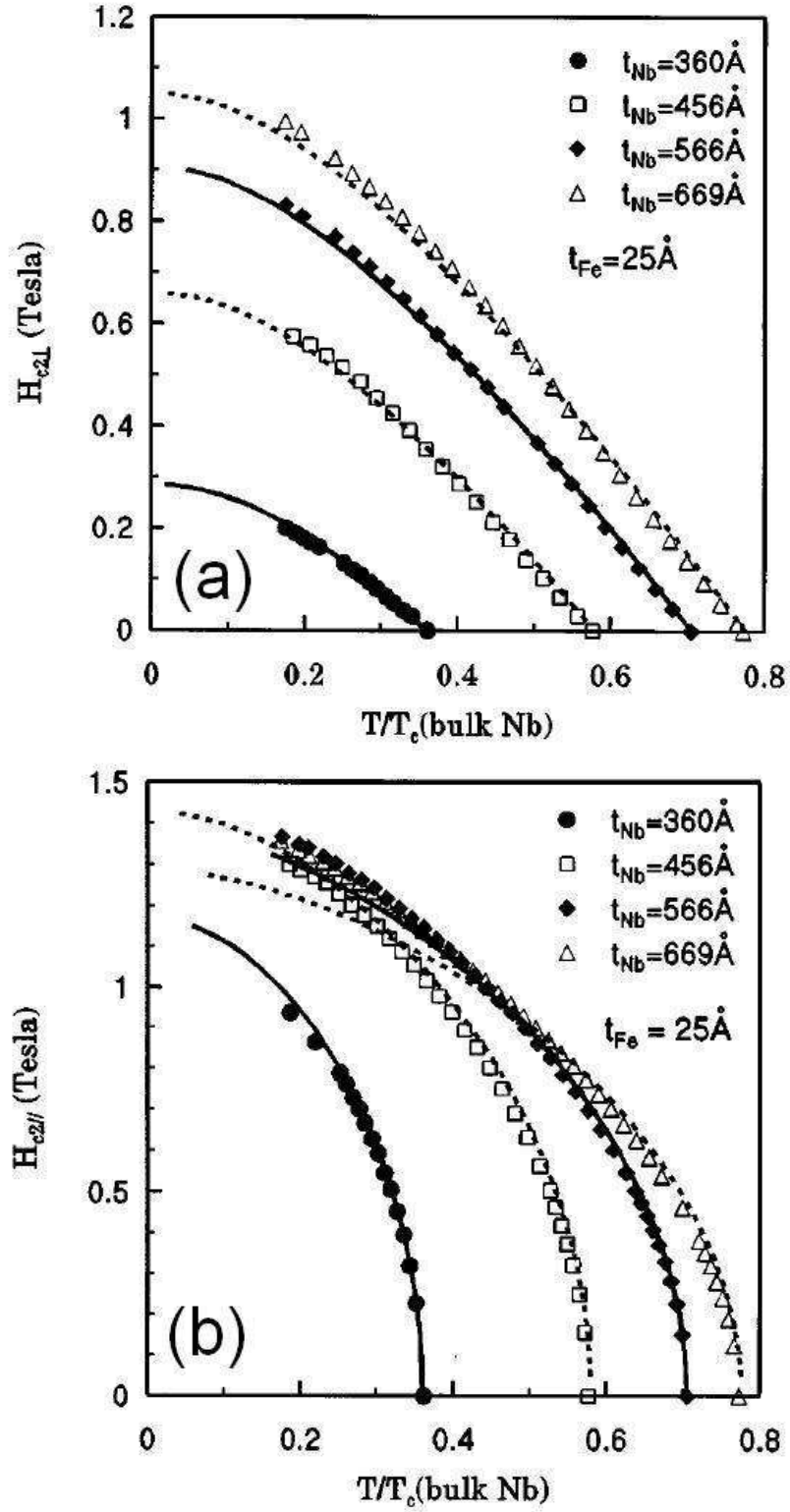


Figura 3.4: Campos críticos paralelo e perpendicular às camadas de Nb. As linhas sólidas correspondem ao cálculo realizado com as equações 3.3 e 3.4, usando $\epsilon = 3,36$ e $\xi_S = 77,8\text{Å}$ [9].

com o modelo de Radović. Os dados foram obtidos para uma amostra multicamadas de Nb/Fe, tendo a camada de Fe espessura igual a $t_{\text{Fe}} = 25\text{\AA}$. Na figura 3.3 é apresentado o ajuste da curva T_c/T_{c0} em função da espessura da camada de Nb, usado para determinar o valor do parâmetro ϵ . Foi realizado um ajuste alternativo com o comprimento de coerência sendo um segundo parâmetro ajustável, o que melhorou a concordância dos valores medidos com a teoria. Nas figuras 3.4a,b são mostrados os dados de H_{c2} paralelo e perpendicular e o ajuste com a teoria de Radović, para várias espessuras fixas de Nb. Outros trabalhos experimentais foram realizados utilizando a teoria de Radović [10, 49, 50]. Entretanto, em situações que ocorrem transições dimensionais, ou em que o sistema de multicamadas apresenta um acoplamento 3D, esta teoria não pode ser aplicada.

Procedimento Experimental

Neste capítulo, será abordada a metodologia e os equipamentos utilizados na obtenção dos dados experimentais que serão apresentados no capítulo subsequente. A caracterização magnética foi realizada em um magnetômetro SQUID comercial. Este equipamento apresenta um série de vantagens sobretudo na sensibilidade nas medidas de momento magnético e no controle de temperatura, que permite fazer medidas em temperaturas de até 1,9K. A seguir, é descrito brevemente o magnetômetro SQUID bem como a técnica de difração de raios X em baixo e alto ângulo, utilizada para determinar a estrutura cristalina dos filmes multicamadas de Ni/Nb utilizados neste estudo.

4.1 Medidas de Magnetização

O magnetômetro SQUID permite aplicar campos magnéticos variando de -5T a 5T em um intervalo de temperatura de 1,9K a 400K. O sistema SQUID apresenta uma grande vantagem devido a sensibilidade extremamente alta dos sinais magnéticos medidos (da ordem de 10^{-7} emu). Isto permite investigar amostras que apresentam momentos magnéticos muito baixos. O equipamento é constituído basicamente de três partes principais: o sistema onde se situa a amostra e o solenóide que possibilita a aplicação do campo magnético, o sistema criogênico que funciona com hélio líquido e o sistema de controle. Este último é monitorado por um computador no qual é instalado um *software* fornecido pelo fabricante que permite controlar todas as funções do magnetômetro.

A amostra é colocada no sistema por meio de uma vareta, a qual é acoplada a um motor de passo responsável por movimentar a amostra entre as bobinas de detecção. Este sistema consiste em um conjunto de quatro bobinas enroladas em uma configuração de segunda derivada, conforme mostra a figura 4.1.

O funcionamento deste sistema é baseado na indução magnética produzida nas bobinas coletoras movendo-se a amostra repetidamente entre elas. Isto promove uma variação no fluxo magnético no interior das bobinas e com isso o surgimento de uma força eletromotriz induzida. Este sinal de potencial

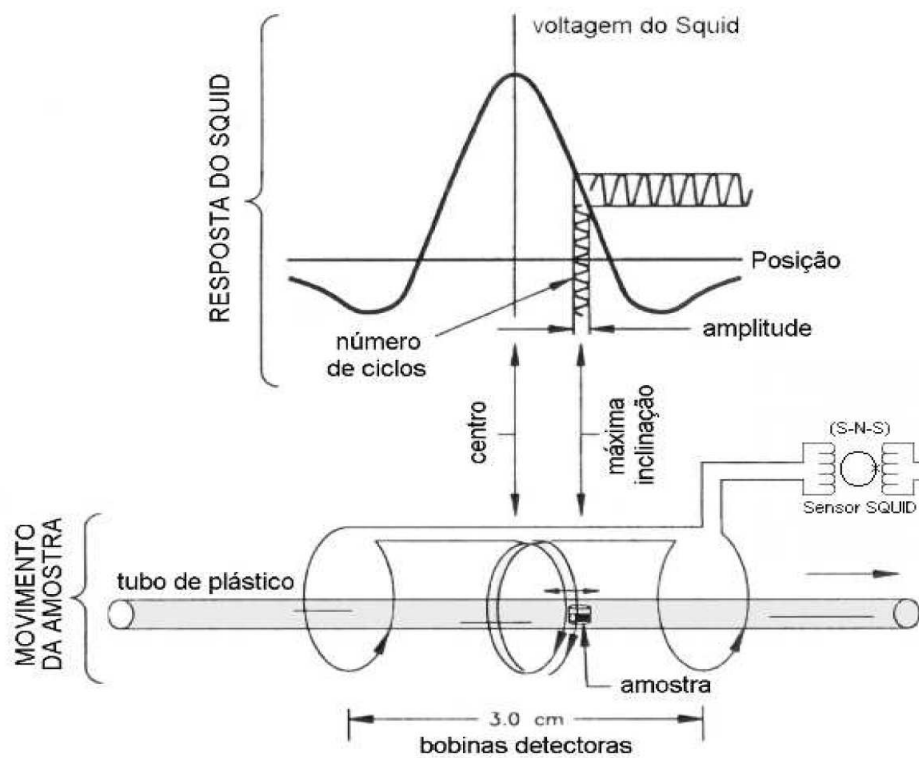


Figura 4.1: Esquema geral do sistema de detecção do magnetômetro SQUID onde a amostra está contida em um tubo plástico o qual se desloca entre as bobinas coletoras [51].

elétrico é enviado ao sensor SQUID o qual está acoplado às bobinas por meio de um transformador de fluxo. A cada passo que a amostra é movimentada, o sinal de potencial induzido é medido obtendo-se um gráfico do potencial *versus* posição da amostra. O sensor SQUID consiste em um laço contendo uma junção Josephson o qual é calibrado com uma amostra padrão de Paládio de modo que um dado valor de diferença de potencial corresponde a um dado valor de momento magnético. O sistema então realiza uma operação de integração sobre a curva de potencial *versus* posição, e com isso, o valor do momento da amostra é determinado [51].

A vareta que conduz a amostra entre as bobinas coletoras permite a fixação de um tubo plástico onde a amostra é montada. Este tubo apresenta momento magnético extremamente baixo de modo que sua contribuição para o momento magnético medido é desprezível. Tipicamente no caso de filmes finos, as medidas são realizadas para duas orientações da amostra: paralela e perpendicularmente ao campo aplicado. Para o caso perpendicular, a amostra é fixada no interior do tubo plástico por meio de duas argolas cortadas

do mesmo tipo de tubo. No caso paralelo, são usados dois canudos plásticos com diâmetros menores, os quais são colocados no interior do tubo com a amostra situada entre eles. As duas disposições da amostra são apresentadas na figura 4.2.

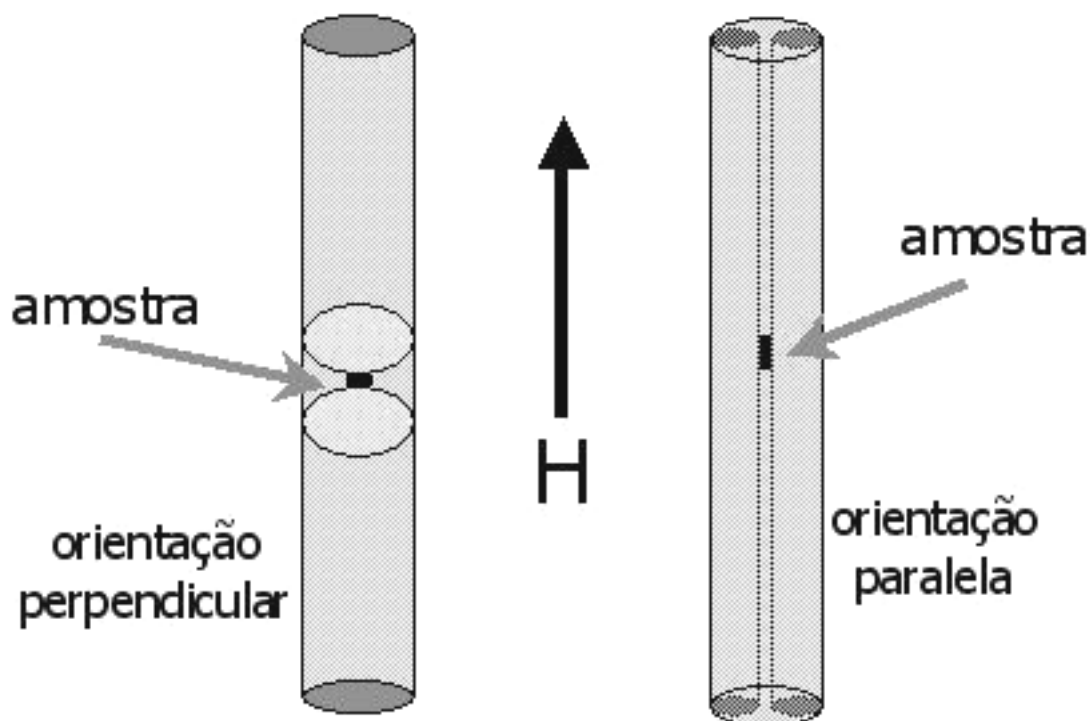


Figura 4.2: Ilustração mostrando o suporte com a amostra a ser medida para as orientações perpendicular e paralela em relação ao campo aplicado.

O diâmetro do tubo plástico usado para as medidas é aproximadamente igual a 5,3 mm, e por esta razão as amostras que serão medidas devem ter dimensões desta ordem. Assim, as quatro amostras utilizadas neste estudo foram cortadas com o uso de uma serra circular. Na extremidade do disco de corte existe uma pequena camada de diamante a qual permite fazer cortes em materiais extremamente duros e com precisão milimétrica. A extremidade fica em contato com a superfície da amostra, e a qualidade do corte pode ser controlada através da velocidade de rotação do disco.

4.2 Medidas de Raios X

Entre os vários métodos de caracterização estrutural a difração de raios X se revela como uma ferramenta essencial para a determinação da estrutura cristalina de um material. Além de fornecer uma determinação precisa do parâmetro de rede de uma dada estrutura é também um método de caracterização não destrutivo.

No caso de estudos em filmes finos e filmes multicamadas, são realizadas medidas em alto ângulo de incidência do feixe, $\theta > 10^\circ$, e medidas em baixo ângulo com $\theta < 10^\circ$. As medidas em alto ângulo fornecem informações da estrutura cristalina intra-camada, onde o padrão de difração observado é oriundo do espalhamento dos raios X pelos planos atômicos dos elementos que constituem as camadas do filme. Nas regiões de baixo ângulo, o padrão observado é devido à interferência construtiva dos feixes difratados pelas interfaces entre as camadas. Este espalhamento produz um padrão oscilatório no difratograma o qual permite, a partir de um cálculo simples, obter a espessura da camada do filme [52].

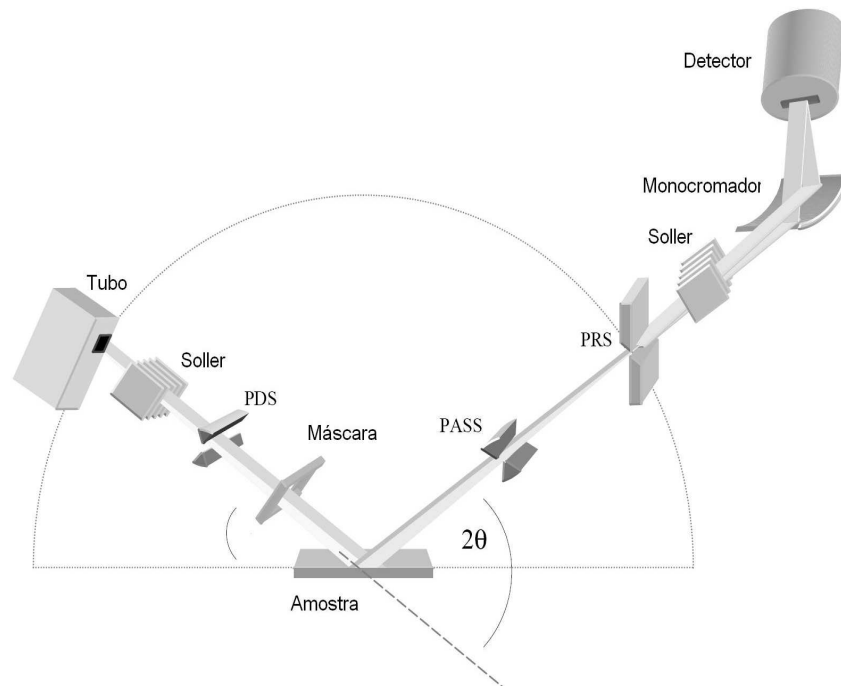


Figura 4.3: Esquema de um difratômetro mostrando os principais componentes dos equipamento [53].

A figura 4.3 apresenta os componentes básicos de um difratômetro. As fendas “Soller” são aplicadas para reduzir a divergência horizontal do feixe, desde que este tende a “abrir” à medida que se desloca em relação ao tubo de raios X, onde o feixe é produzido [54]. Este conjunto de fendas é constituído por um material absorvedor de raios X, de modo que os feixes que não são paralelos às fendas são eliminados. As fendas PDS e PRS também são aplicadas com o objetivo de limitar a divergência do feixe mas neste caso isto corresponde a divergência na direção vertical. O monocromador é responsável por eliminar as outras componentes da radiação, especificamente a componente Cu-K_β no caso em que seja utilizado um

tubo de cobre. O filme a ser analisado é alinhado de modo que sua superfície esteja na direção horizontal. Diferenças no ajuste da altura da superfície do filme podem ocasionar erros nos ângulos medidos, dessa forma para obter-se precisão é necessário que o ajuste seja bem feito. Todo o sistema é controlado por um computador através de um *software* disponibilizado pelo fabricante. Durante a medida, o braço que contém o detector sofre um deslocamento angular cujo passo pode ser controlado, além do tempo de permanência do mesmo em uma determinada direção. Os dados da contagem dos fótons para cada valor do ângulo θ correspondente são registrados pelo sistema. O procedimento de medida é idêntico tanto para altos como para baixos ângulos.

4.2.1 Análise dos dados em alto ângulo

Os átomos em um cristal estão arranados em uma família de planos paralelos, com cada família tendo uma separação característica d entre seus planos. Quando um feixe monocromático de raios X incide em um cristal, o mesmo será espalhado em todas as direções, mas devido ao arranjo regular dos átomos, em certas direções as ondas espalhadas irão interferir construtivamente enquanto que em outras, ocorrerá interferência destrutiva. A localização dos máximos de interferência dependem do ângulo θ , comprimento de onda λ do feixe de raios X incidente e do espaçamento de rede do material sob estudo. Estas quantidades estão relacionadas na Lei de Bragg, equação 4.1, a qual permite determinar o espaçamento entre os planos atômicos de um material dados o comprimento de onda e os valores do ângulo θ para o qual ocorre a interferência completamente construtiva.

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad \text{com,} \quad n = 1, 2, \dots \quad (4.1)$$

O espaçamento interplanar d está relacionado com o tamanho e a forma da cela unitária do cristal. Através de argumentos geométricos, é possível estabelecer uma relação entre estes parâmetros. Isto permite prever os possíveis ângulos em que haverá interferência construtiva, e com isso, o tipo de cela unitária pode ser identificada. A interação do feixe de raios X não depende apenas do espaçamento entre os planos de Bragg, mas também depende da forma como os átomos e elétrons estão dispostos na estrutura cristalina. Esta dependência afeta a intensidade dos feixes difratados [54].

Portanto, o padrão de difração de um dado material é especificado pela direção (dada pelo ângulo θ) e pela intensidade dos feixes difratados. Esse conjunto de dados constitui um tipo de impressão digital do material, tornando possível a sua identificação. Desde 1969, o *Joint Committee on Powder Diffraction Standards* (JCPDS) reúne arquivos contendo padrões de difração para vários materiais. Nesses arquivos são especificados o valor de espaçamento interplanar d e a intensidade da linha correspondente para cada substância. Com o uso de um difratômetro, é possível determinar o padrão de difração para uma amostra

cuja composição é desconhecida. O padrão de difração obtido é então comparado com o padrão JCPDS que apresente as mesmas especificações e com isso, a composição da amostra é determinada.

4.2.2 Análise dos dados em baixo ângulo

Considerando o caso de baixo ângulo, é observado que as informações acerca das multicamadas é muito distinta do caso em altos ângulos. Isso se deve ao fato da contribuição da rede cristalina do filme ser desprezível no limite em que o espaçamento d entre os planos atômicos é muito menor do que $\lambda/\sin\theta$ [52]. Em consequência, uma aproximação ótica para o problema da reflexão dos raios X pode ser aplicada para explicar o espectros medidos. No caso mais simples, as multicamadas são consideradas como uma pilha de dois materiais com índices de refração diferentes e o feixe incidente é espalhado pelas interfaces entre as camadas. Esta aproximação será utilizada neste trabalho, cujo objetivo da caracterização em baixos ângulos é obter os valores das espessuras das camadas que compõem o filme.

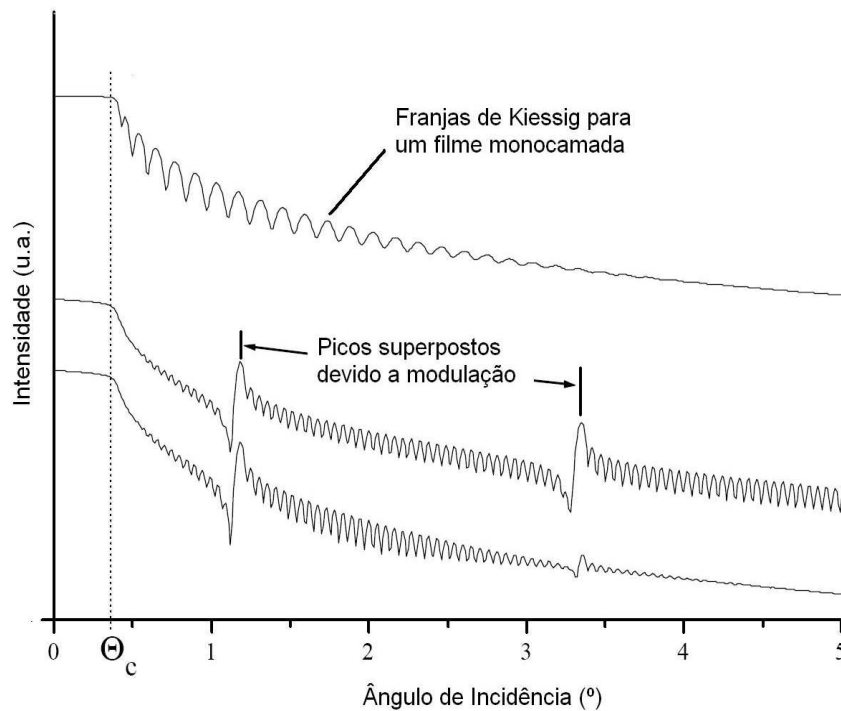


Figura 4.4: Alguns padrões de difração em baixo ângulo para um sistemas multicamadas [53].

A figura 4.4 mostra um resumo das possíveis curvas medidas em baixos ângulos. A primeira curva é para um filme monocamada, em que são claras as oscilações. Estas são chamadas de franjas de Kiessig,

as quais surgem devido a interferência entre as ondas espalhadas pela superfície e pela interface do filme com o substrato [52]. É possível com a aplicação da Lei de Bragg, determinar a posição angular das franjas na qual ocorre os máximos de interferência. No caso em que a superfície e a interface apresentam rugosidade, as oscilações são amortecidas devido ao coeficiente de transmissão de uma superfície rugosa ser maior comparada a de uma superfície plana. Os dois últimos gráficos apresentam medidas para sistemas multicamadas em que existem picos superpostos às franjas de Kiessig. Estes picos estão relacionados com o espalhamento da bicamada, $\Lambda = t_{\text{Ni}} + t_{\text{Nb}}$, geralmente chamado comprimento de modulação, [52]. As quantidades, t_{Ni} e t_{Nb} , são as espessuras das camadas de Ni e Nb individualmente, no caso do sistema sob estudo neste trabalho. A posição dos picos pode ser determinada via Lei de Bragg generalizada para o caso de um sistema multicamadas [55],

$$2\Lambda = \frac{n\lambda}{\sqrt{\sin^2 \theta_n - \sin^2 \theta_c}} \quad (4.2)$$

em que n é um inteiro representando a ordem do máximo de interferência e θ_c é o ângulo crítico, de reflexão total. Novamente, os efeitos de rugosidade das interfaces podem gerar amortecimentos no padrão medido, suprimindo as franjas de Kiessig fortemente e os picos superpostos do sistema multicamadas.

Conforme mencionado acima, no limite de ângulos muito pequenos, ($\theta \approx 0$), o caráter ótico dos raios X é realçado, sendo necessário considerar efeitos de refração. Desta forma, é natural admitir que exista um limite para o ângulo de incidência dos raios X, abaixo do qual o feixe sofre reflexão total assim como acontece comumente com luz no espectro visível. O ângulo crítico pode ser determinado com o padrão de difração medido usando a equação abaixo,

$$\sin \theta_c = \sqrt{\frac{m^2 \sin^2 \theta_n - n^2 \sin^2 \theta_m}{m^2 - n^2}} \quad (4.3)$$

aplicando-se para dois picos consecutivos, de ordem m e n [55]. As equações 4.2 e 4.3 são utilizadas para determinar Λ a partir do padrão de difração medido em baixos ângulos.

Para determinar o valor da espessura das camadas individualmente, é feito um conjunto de medidas para amostras com a espessura de uma das camadas variável e a outra espessura fixa. Graficando o valor da modulação em função da espessura (nominal) variável, é possível fazer um ajuste linear destes pontos, como mostrado no capítulo 4 no caso das amostras usadas neste trabalho de tese. Deste modo os coeficientes linear e angular fornecem correções para os valores nominais com os quais as amostras foram crescidas. Ou seja, para um conjunto de amostras com t_{Nb} fixo e t_{Ni} variável, determinando os valores de Λ correspondentes, pode-se construir o gráfico Λ vs. $t_{\text{Ni}_{\text{nominal}}}$. Portanto, fazendo o ajuste linear obtém-se uma equação da forma, $\Lambda' = at_{\text{Ni}_{\text{nominal}}} + b$, de modo que as espessuras corrigidas são $t_{\text{Nb}} = b$ e $t_{\text{Ni}} = at_{\text{Ni}_{\text{nominal}}}$.

Parte II

Resultados Obtidos

Resultados e Discussão

Neste capítulo serão apresentados os resultados da caracterização estrutural e magnética para as quatro amostras estudadas neste trabalho.

5.1 Amostras e Caracterização Estrutural

Os filmes multicamadas foram obtidos pelo Dr. John E. Mattson do *Argonne National Laboratory*, Illinois, EUA. As amostras foram crescidas por *magnetron sputtering*, em substratos de safira 90°, mantidos a temperatura ambiente e em atmosfera de Argônio (99,999% de pureza), com pressão de 3mTorr. Os elementos Nb(99,999%) e Ni(99,9%) foram usados como alvos com taxas de deposição no intervalo de 3 a 4 Å/s e uma distância entre o alvo e o substrato de 9 cm. A pressão de base para o sistema foi de 1×10^{-7} Torr. Todas as amostras foram produzidas com uma camada de Ni em ambas as superfícies externas. Dois conjuntos de amostras foram preparadas: o primeiro foi obtido com a espessura nominal da camada de Nb igual a 90 Å e variando-se a espessura da camada de Ni de 0 a 25 Å, com 10 bicamadas em cada amostra. O outro conjunto foi feito tendo espessura nominal das camadas de Ni fixa em 20 Å e variando-se a espessura das camadas de Nb de 0 a 250 Å, com 9 bicamadas em cada amostra.

5.1.1 Caracterização por raios X em baixo ângulo

Neste trabalho de tese foram estudadas duas amostras de cada conjunto e as mesmas foram primeiramente submetidas à medidas de difração de raios X. Este estudo foi realizado com o objetivo de verificar as propriedades estruturais internas das camadas e o caráter lamelar dos filmes. As medidas de raios X em baixos ângulos são adequadas para verificar filmes multicamadas devido ao padrão de raios X nesta região ser devido ao espalhamento do feixe pela superfície e interface entre as camadas [52]. O procedimento para determinar a espessuras das camadas através do medidas de difração foi discutido no capítulo 3. Nas figuras 5.1 e 5.2, são apresentados os padrões obtidos para as quatro amostras estudadas. Os dados da figura 5.1 cor-

respondem às amostras com composição nominal $\text{Ni}(5\text{\AA})[\text{Nb}(90\text{\AA})/\text{Ni}(5\text{\AA})]_{19}$ e $\text{Ni}(12\text{\AA})[\text{Nb}(90\text{\AA})/\text{Ni}(12\text{\AA})]_{19}$. Estas amostras serão rotuladas como NiNb-D e NiNb-C, respectivamente.

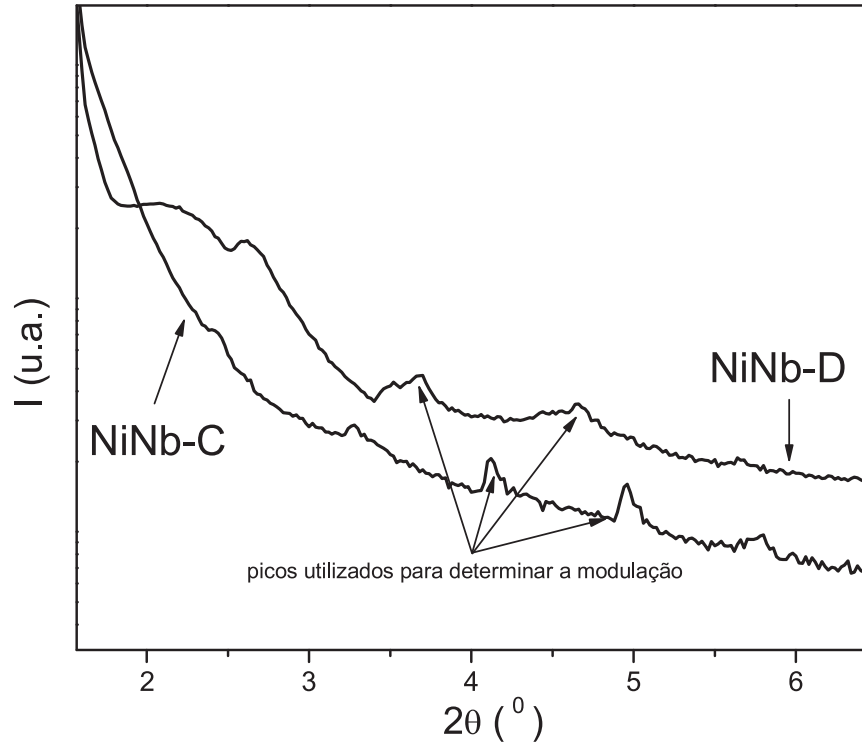


Figura 5.1: Padrão de difração de raios X em baixo ângulo para as amostras NiNb-D e NiNb-C. As curvas apresentam uma periodicidade típica de sistemas multicamadas no intervalo $4^\circ < 2\theta < 5^\circ$.

A forma dos padrões de difração obtidos para estas amostras, mostram que o caráter lamelar não é bem proeminente nestas duas amostras. Isto é explicado pelo fato das camadas de Ni serem muito estreitas. Desde que é esperado uma interdifusão dos átomos nas interfaces entre as camadas, possivelmente nestas amostras existam algumas camadas em que a desordem é muito pronunciada. Sendo assim, os feixes de raios X foram espalhados sem coerência em fase, produzindo um padrão quase aperiódico conforme é evidenciado pela figura. Em um pequeno intervalo, $4^\circ < 2\theta < 5^\circ$, são observados pequenos picos para a amostra NiNb-C. No caso da amostra NiNb-D, são observados dois picos em $3,2^\circ$ e $4,2^\circ$, e estes foram utilizados para fazer a estimativa das espessuras das camadas individualmente.

Na figura 5.2, são apresentados os resultados para as amostras do segundo conjunto com composições nominais iguais a $\text{Ni}(20\text{\AA})[\text{Nb}(250\text{\AA})/\text{Ni}(20\text{\AA})]_9$ (NiNb-A) e $\text{Ni}(20\text{\AA})[\text{Nb}(150\text{\AA})/\text{Ni}(20\text{\AA})]_9$ (NiNb-B). Neste caso o caráter lamelar da amostra é bem pronunciado dado que ambos os padrões apresentam um caráter

periódico. Comparando os dados das figuras 5.1 e 5.2, verifica-se que no primeiro caso, o caráter granular pode ser bem significativo tendo em vista a desordem nas interfaces quando comparadas com as amostras NiNb-A e NiNb-B. Embora os padrões apresentem estas características diferenciadas, nas quatro medidas não ocorre com clareza o surgimento das franjas de Kiessig. No caso das duas últimas curvas, que apresentam um caráter periódico, isso é um indicativo de rugosidade nas interfaces, ou seja, mesmo nestas amostras pode existir desordem nas interfaces embora esta não seja dominante. Conforme discutido no capítulo 3, outra evidência de desordem nas interfaces é o amortecimento das oscilações com o aumento do ângulo, isso é notável nas medidas da figura 5.2 onde as oscilações são suprimidas para $2\theta > 3,3^\circ$ e $3,5^\circ$, para as amostras NiNb-A e NiNb-B, respectivamente.

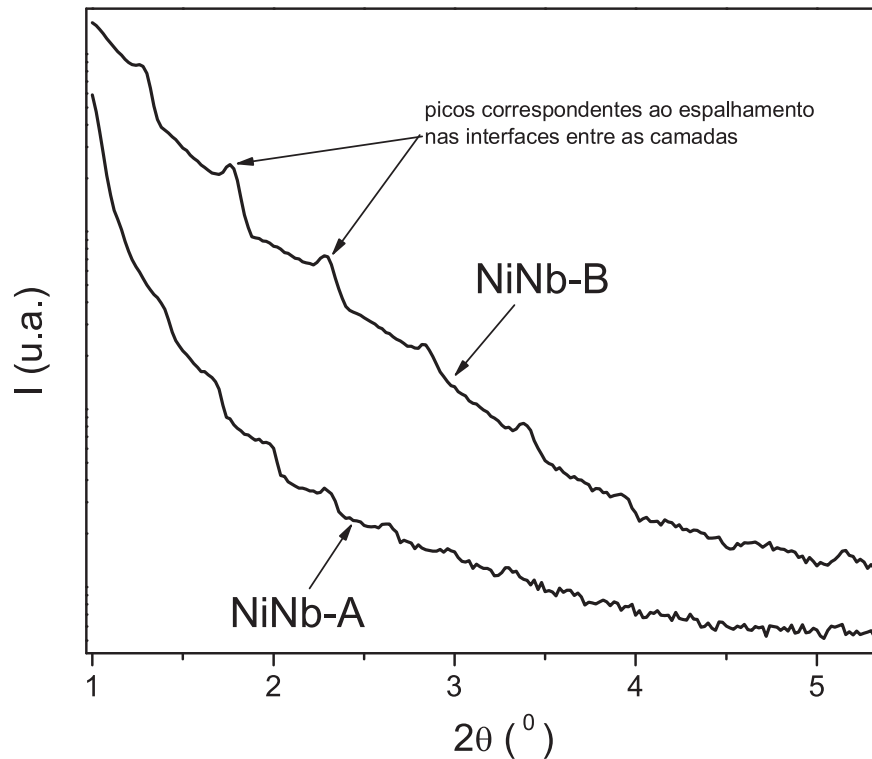


Figura 5.2: Padrão de difração de raios X em baixo ângulo para as amostras NiNb-A e NiNb-B. Para este conjunto de amostras a periodicidade é muito melhor comparada ao padrão da figura 5.1 [56].

Foram medidos padrões de difração para outras amostras com o objetivo de determinar a correção para os valores das espessuras. Para a série com a espessura de Ni fixa em $20 \text{ \AA}$ foram obtidos sete valores de modulação (para $t_{\text{Nb}} = 250, 200, 150, 120, 90, 60, 20 \text{ \AA}$). Para a série com a espessura de Nb fixa em $90 \text{ \AA}$ foram obtidos dez padrões de difração (para $t_{\text{Ni}} = 5, 6, 10, 12, 14, 16, 18, 20, 22, 24 \text{ \AA}$). Com o uso das

equações 4.2 e 4.3, foram obtidos os valores da modulação Λ (ver tabela 5.1, na página 53) correspondente aos picos de difração, conforme mostrado nas figuras 5.1 e 5.2. Os gráficos da figura 5.3 mostram os valores da modulação obtidos de cada padrão de difração em função do valor da espessura nominal, para as duas séries de amostras. O ajuste linear fornece os fatores de correção, onde na figura 5.3a o coeficiente linear fornece a espessura média da camada de Ni como sendo de 18,7 Å. O coeficiente angular funciona como o fator de correção, que multiplicado pelo valor nominal, fornece o valor corrigido da espessura camada de Nb. Como mostra a figura 5.3b, para a série com a camada de Nb fixa, o coeficiente linear forneceu um valor de 86,3 Å para a camada de Nb.

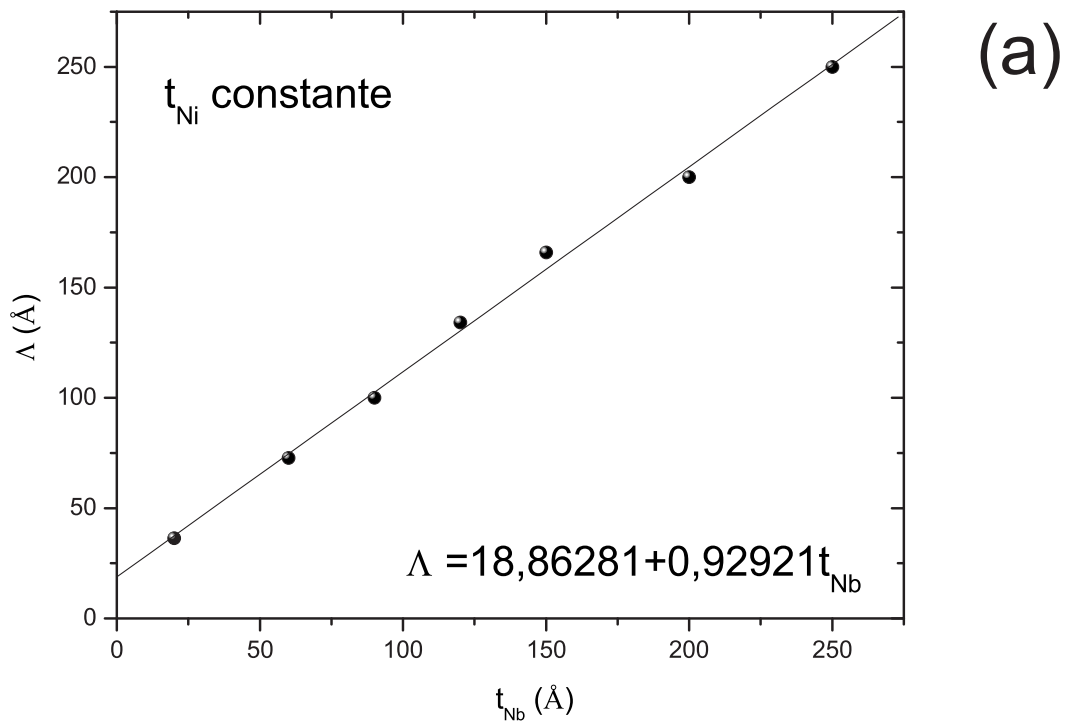


Figura 5.3: (a) Modulação em função da espessura nominal das camadas. Em função da espessura da camada de Ni, onde o coeficiente angular fornece um fator de correção para a espessura da camada de Nb, e a ordenada corresponde ao valor corrigido da camada de Ni [56].

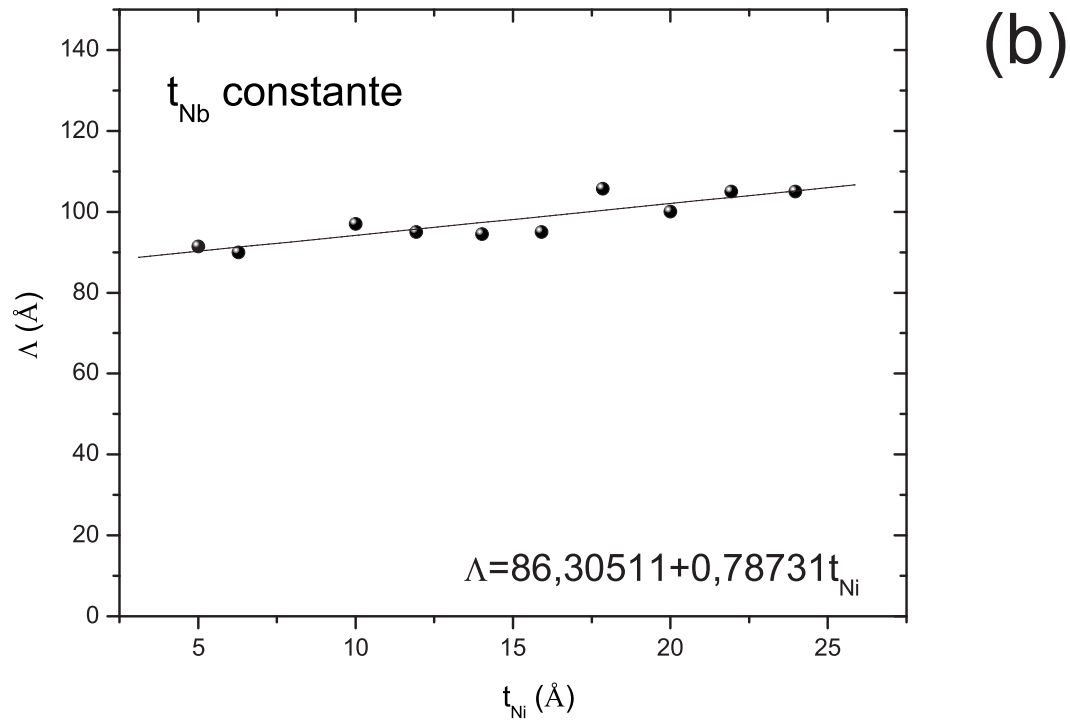


Figura 5.3: (continuação) (b) Modulação em função da espessura nominal das camadas. Em função da espessura da camada de Ni, onde o coeficiente angular fornece um fator de correção para a espessura da camada de Ni, e a ordenada corresponde ao valor corrigido da camada de Nb.

Na tabela 5.1, são expressos os valores corrigidos para as camadas de Ni e Nb para as quatro amostras estudadas, além dos valores de modulação obtidos para estas amostras.

Amostra	Modulação (Å) (Eq's 4.2 e 4.3)	Espessura Nominal(t_{Nb}/t_{Ni})(Å)	Espessura Corrigida(t_{Nb}/t_{Ni})(Å) (Figura 5.3)
NiNb-A	250,9	250/20	232/18,9
NiNb-B	158,3	150/20	139,4/18,9
NiNb-C	95,7	90/12	86,3/9,4
NiNb-D	90,3	90/5	86,3/4

Tabela 5.1: Valores das espessuras das camadas determinados por difração de raios X a baixo ângulo.

5.1.2 Caracterização por raios X em alto ângulo

A estrutura cristalina do Nb é cúbica de corpo centrado com parâmetro de rede $3,3 \text{ \AA}$, a 25°C e a pressão de 1 atm. O Ni apresenta uma estrutura cúbica de face centrada e um parâmetro de rede igual a $3,5 \text{ \AA}$ a 25°C e a pressão de 1 atm [54]. Esses são dados correspondentes a uma amostra com dimensões macroscópicas. No caso de um sistema multicamadas, esses dados podem mudar significativamente desde que os átomos vão sendo depositados individualmente, ajustando-se à estrutura cristalina do substrato [30]. Para caracterizar as propriedades estruturais internas do sistema multicamadas, a difração em alto ângulo permite verificar o parâmetro de rede bem como a orientação dos planos atômicos. Com o uso da Lei de Bragg (equação 4.1), é possível determinar o parâmetro de rede de um sistema cristalino com a localização dos picos no difratograma, oriundos da interferência dos feixes espalhados pelos planos atômicos. As medidas foram realizadas com o uso de uma radiação $\text{CuK}\alpha$, cujo comprimento de onda é igual a $1,5418 \text{ \AA}$. Na figura 5.4 é apresentado um difratograma para a amostra NiNb-A, onde é evidente a existência de dois picos para $2\theta \approx 38^\circ$ e 43° .

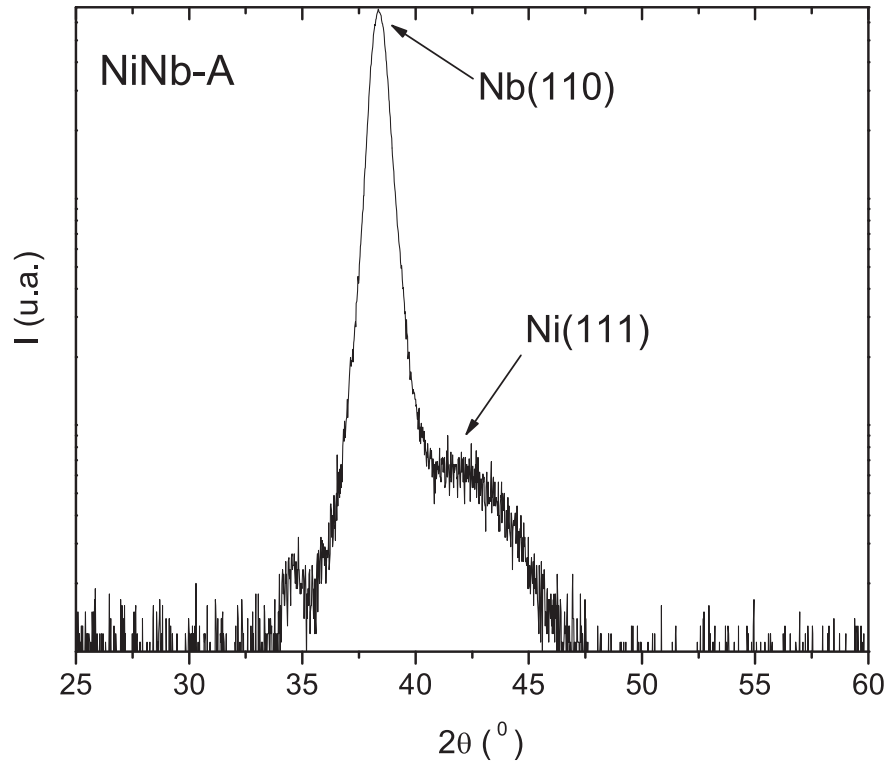


Figura 5.4: Padrão de difração de raios X em alto ângulo no qual é verificada a texturização dos planos de Ni e Nb nas direções (111) e (110), respectivamente [56].

De acordo com a literatura, estes picos correspondem à reflexões dos planos (110) do Nb e (111) do Ni[54, 1]. Com estes valores pode-se determinar o espaçamento d entre os planos atômicos de Ni e Nb, iguais a 2,15 Å e 2,36 Å, respectivamente. Para as demais amostras o padrão de difração não muda qualitativamente, apenas as intensidades dos picos variam porque a quantidade relativa de átomos de Ni e Nb depende das espessuras das camadas.

5.2 Medidas de Magnetização

5.2.1 Análise dos dados de Magnetização

Neste trabalho foram realizadas medidas de magnetização em função da temperatura para determinados valores de campo, nos processos ZFC e FCC, e em função do campo aplicado para um dado valor de temperatura. O processo ZFC consiste em resfriar a amostra até 2 K na ausência de campo magnético e, quando o limite inferior de temperatura é atingido, aplica-se o campo escolhido. Em seguida, mede-se a magnetização do material subindo-se a temperatura na taxa desejada. O processo FCC é complementar, ou seja, quando é atingido valor máximo da temperatura de interesse (12 K na maioria das medidas), inicia-se a redução da temperatura novamente, em geral na mesma taxa usada na subida, medindo-se até 2 K novamente.

A supercondutividade em materiais do tipo II, a exemplo do Nb, é fortemente dominada pelo estado misto tendo em vista que o campo crítico inferior, H_{c1} , é geralmente muito pequeno comparado ao campo crítico superior, H_{c2} [12]. Desta forma, a caracterização magnética torna-se uma ferramenta muito importante, desde que esta é muito sensível às mudanças no comportamento dos vórtices. Para algumas amostras o comportamento geral foi dominado pela dimensionalidade reduzida, a qual exerce forte influência sobre a dinâmica de vórtices [27]. Isto também tem sido evidenciado em materiais fortemente anisotrópicos, como os óxidos de alta temperatura crítica e alguns materiais orgânicos [57].

Neste trabalho, foram realizadas medidas de magnetização em função da temperatura para determinados valores de campo, nos processos ZFC e FCC, e em função do campo aplicado para um dado valor de temperatura. Abaixo serão mostrados os resultados para as amostras NiNb-A e NiNb-B nas quais o efeito da dimensionalidade reduzida é mais proeminente. A seguir, serão apresentados os resultados para as amostras NiNb-C e NiNb-D as quais apresentam um comportamento mais próximo do esperado para um sistema macroscópico tridimensional.

5.2.2 Amostra NiNb-A

As medidas de magnetização em função da temperatura revelaram algumas transições dimensionais do acoplamento supercondutor, com efeitos no sistema de vórtices. Além disso, os efeitos do momento magnético das camadas de Ni também é claramente observado.

Orientação Perpendicular

Na figura 5.5 são apresentadas as curvas obtidas para o campo aplicado perpendicularmente aos planos do filme. O comportamento geral das curvas é o mesmo, ou seja, o momento magnético é aproximadamente constante acima de 7 K e quando a temperatura é reduzida deste valor a magnetização apresenta uma transição abrupta para o estado diamagnético. Portanto, para $T < 7$ K o comportamento global é supercondutor, dominado pela resposta das camadas de Nb. É importante recordar que o Nb é um supercondutor do tipo II e praticamente todo intervalo de temperaturas corresponde ao estado misto [12].

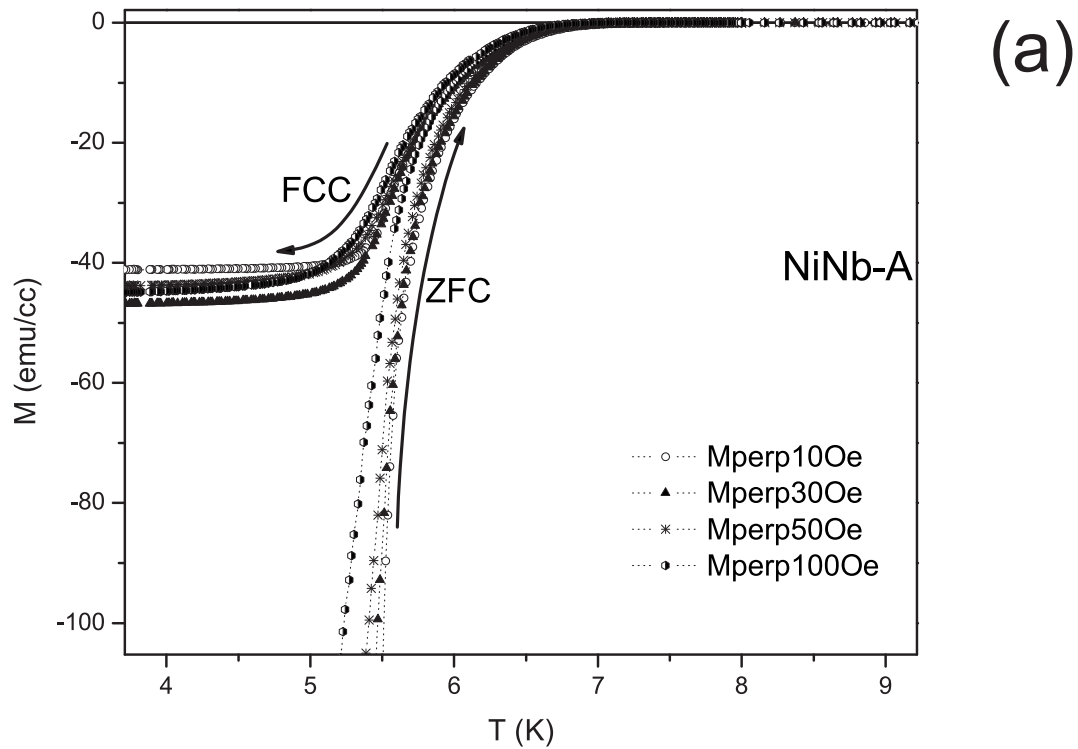


Figura 5.5: (a) Medidas de magnetização em função da temperatura para a amostra NiNb-A , com o campo aplicado perpendicularmente às camadas.

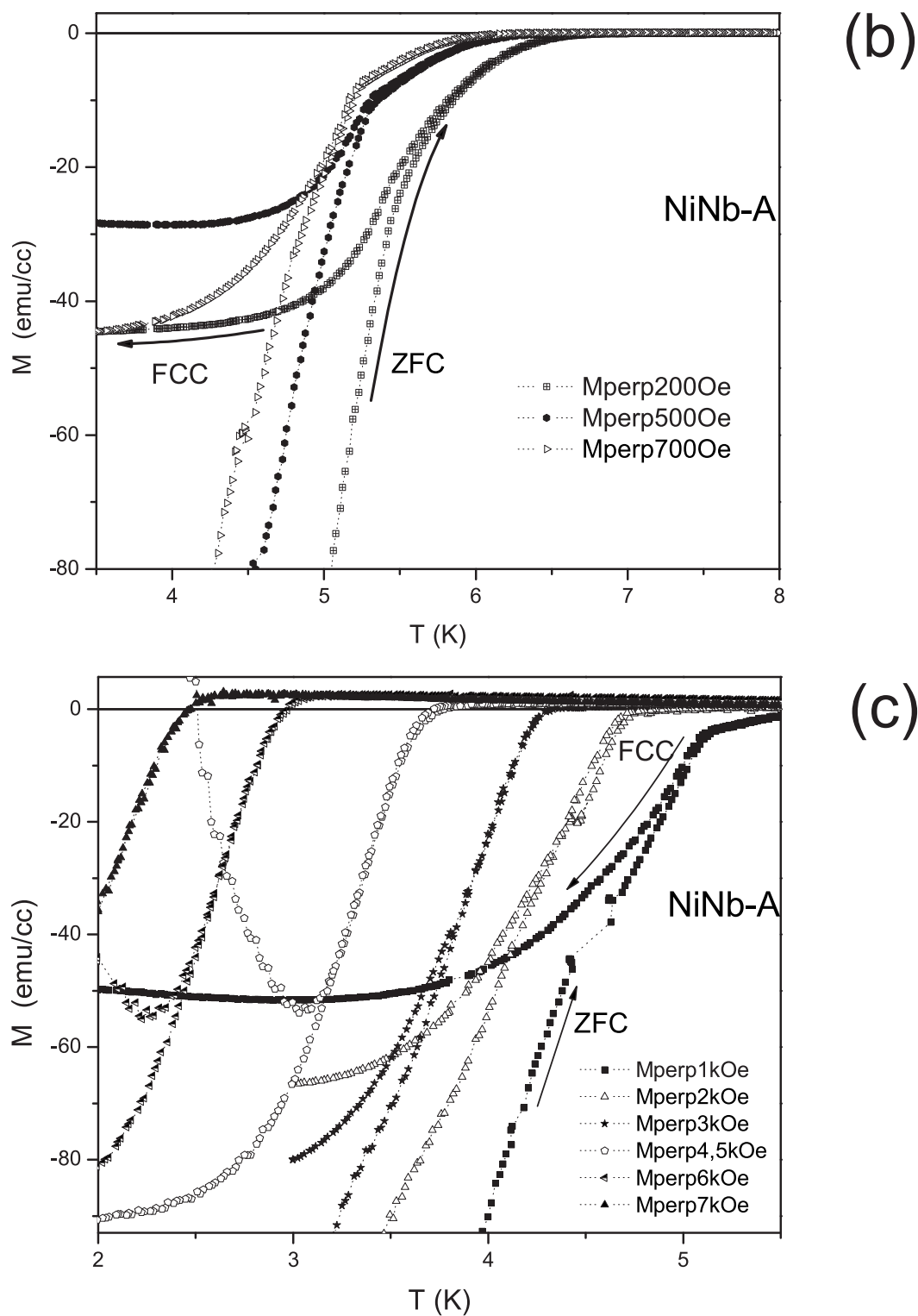


Figura 5.5: (continuação) (b,c) Medidas de magnetização em função da temperatura para a amostra NiNb-A, com o campo aplicado perpendicularmente às camadas.

No processo ZFC, a magnetização vai diminuindo em módulo com o aumento da temperatura devido à contínua penetração dos vórtices nas camadas de Nb, o que tende a reduzir o sinal proveniente das correntes de blindagem supercondutoras, que são responsáveis pela resposta diamagnética. No processo FCC, a magnetização tende a estabilizar em um valor de saturação devido a uma certa quantidade de vórtices que ficam aprisionados no material [12]. Além da contribuição das camadas de Nb, existe ainda a contribuição positiva das camadas ferromagnéticas de Ni e uma contribuição diamagnética do substrato de safira. As contribuições diamagnéticas dominam quase em todo o intervalo de campos aplicados, mas conforme mostrado na figura 5.5c, para campos acima de 3 kOe a curva FCC exibe um comportamento bem diferente fazendo com que a magnetização seja positiva em $T \approx 2$ K. Isso pode ser uma evidência de ordenamento ferromagnético mais forte das camadas de Ni, para campos acima de 3 kOe.

A temperatura crítica (T_c) do estado supercondutor deste sistema é de 6,9 K. Esta temperatura foi determinada pela curva de 10 Oe a qual corresponde ao campo mais baixo aplicado. A determinação da temperatura crítica tem-se mostrado extremamente difícil tendo em vista a forma arredondada da transição principalmente para campos inferiores a 200 Oe. Com estes dados, é possível estabelecer o diagrama de fases HxT para o sistema supercondutor, o qual é apresentado na figura 5.6b e que será discutido mais adiante.

Associado à curvatura positiva do ramo FCC das curvas MxT, o trecho reversível da magnetização é notavelmente aumentado em relação às curvas de baixo campo (inferiores a 100 Oe). Este comportamento motivou a extração dos pontos onde as curvas ZFC e FCC se separam, permitindo a construção da linha de irreversibilidade para a amostra NiNb-A, como mostrado na figura 5.6b. O estudo desta linha é largamente utilizado para verificar transições na rede de vórtices, especificamente transições envolvendo fusão ou *depinning* dos vórtices. Conforme mencionado no capítulo 2, a linha de irreversibilidade divide o diagrama de fases em duas regiões: uma reversível onde o transporte de corrente elétrica é dissipativo devido a movimentação dos vórtices, porque nesta região do diagrama os vórtices estão livres para se moverem, e outra região irreversível, onde os vórtices estão aprisionados, e neste caso, portanto, não ocorre dissipação de energia quando é aplicada uma corrente elétrica [25]. Outra mudança, que pode ser atribuída ao comportamento dos vórtices, pode ser verificada para campos perpendiculares no intervalo de 30 Oe a 7 kOe, onde é possível observar uma segunda transição. Na figura 5.6a, são mostradas as curvas no intervalo de 500 Oe a 3 kOe, mais detalhadamente, onde a segunda transição fica mais evidente. Os símbolos “*”, indicam o ponto onde ocorre a transição e uma visão ampliada das curvas de 2 kOe e 3 kOe é apresentada no canto inferior direito. Este tipo de transição dupla também tem sido observado em monocristais de Bi2212 [15, 58]. Uma explicação para este comportamento não usual foi feita considerando

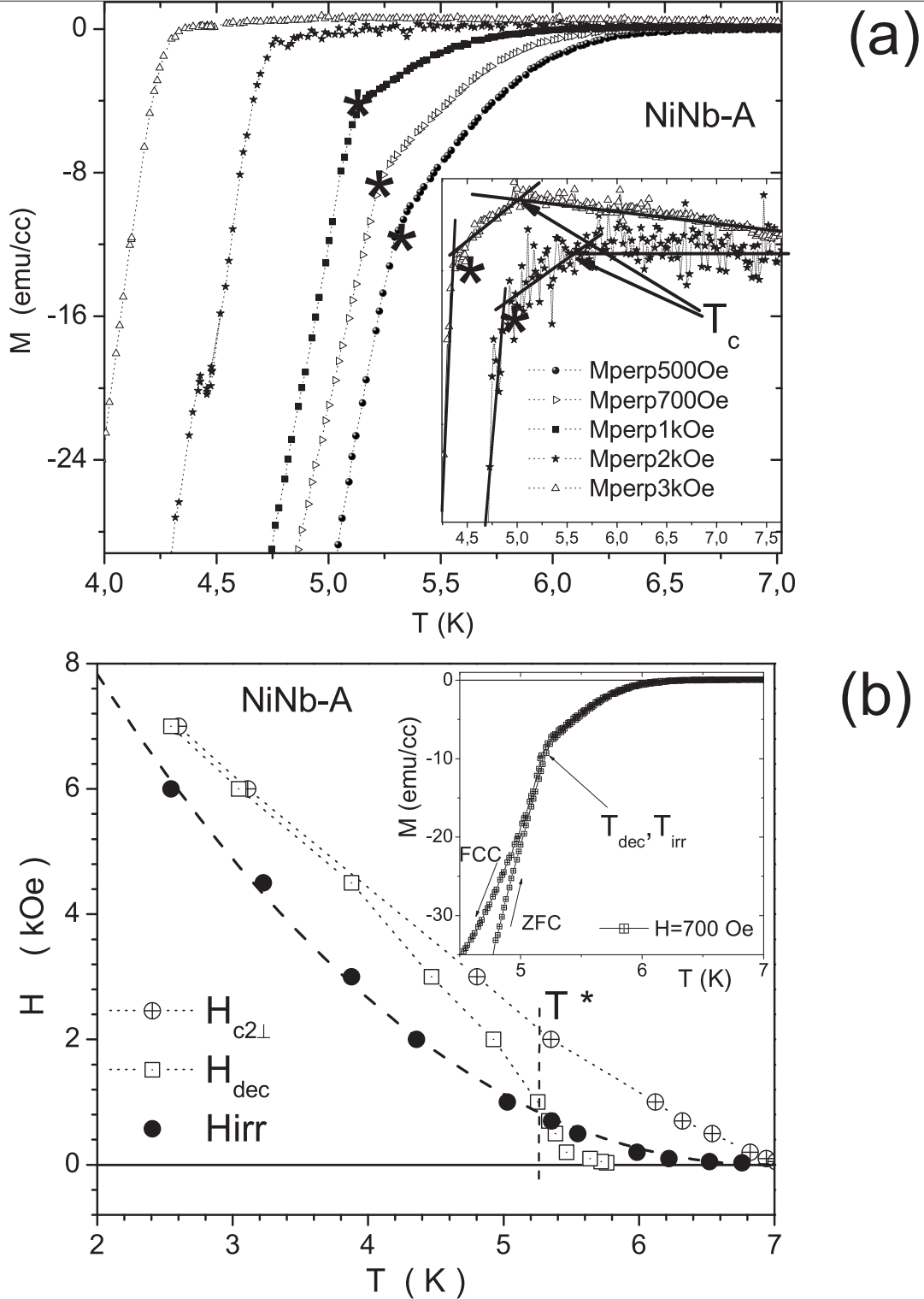


Figura 5.6: (a) Detalhe das curvas (ZFC) para campos perpendiculares variando de 500 Oe a 3 kOe evidenciando a dupla transição. Os símbolos “*” indicam a transição. No detalhe no canto inferior direito é a uma visão ampliada das curvas para 2 kOe e 3 kOe onde é clara a transição supercondutora e a segunda transição. As retas auxiliares indicam o comportamento geral das curva [56]. (b) Diagrama de fases obtido com as curvas mostradas na figura 5.5. São apresentadas a linha do campo crítico superior ($H_{c2\perp}(T)$), a linha de desacoplamento $H_{dec}(T)$ e a linha de irreversibilidade (H_{irr})[56].

que a primeira transição (em T_0) na temperatura mais alta é produzida pelos grãos supercondutores individuais, enquanto que a segunda transição na temperatura inferior é atribuída ao acoplamento Josephson entre os grãos [59]. Este tipo de mecanismo de acoplamento não tem sido observado em sistemas multicamadas crescidos artificialmente. Outra possível explicação para a transição observada na temperatura inferior poderia ser um desacoplamento da rede de vórtices, ou seja, uma transição de uma rede de Abrikosov tridimensional para uma rede de panquecas de vórtices [27]. Isto poderia ocorrer quando o comprimento de coerência perpendicular aos planos fosse menor do que a espessura das camadas de Nb, confinando a supercondutividade nas mesmas. Graficando os pontos correspondentes à transição na temperatura inferior, pôde-se construir uma linha de “desacoplamento dos vórtices”, $H_{dec}(T)$, a qual é apresentada na figura 5.6b. Também é mostrado o diagrama $H \times T$ obtido com os valores de $T_c(H_{c2\perp}(T))$ e a linha de irreversibilidade, $(H_{irr}(T))$ [27]. Esta última foi bem ajustada com a função $H_{irr}(T) = 15,9 \left(1 - \frac{T}{T^*}\right)^{2,1}$, cujo gráfico é representado pela linha tracejada na figura 5.6b.

A curva $H_{c2\perp}(T)$ mostra uma pequena curvatura para cima, a qual tem sido observada em outros sistemas multicamadas. É bem estabelecido na literatura que esta é uma característica universal das multicamadas e tem sido atribuída ao caráter granular das camadas [13]. Esta granularidade produz efeitos de localização fraca o que faz com que as interações coulombianas entre os elétrons sejam enfraquecidas e com isso o campo crítico superior é maior do que o esperado sem estes efeitos [60]. Assim, o comportamento de $H_{c2\perp}$ é diferente do previsto pela teoria WHH [61], que leva em consideração apenas os efeitos de quebra de pares de Cooper devido a paramagnetismo de Pauli e espalhamento spin-órbita, onde o campo crítico deveria exibir uma curvatura negativa próximo de zero Kelvin.

A linha de desacoplamento, $H_{dec}(T)$, provavelmente apresenta origens físicas diferentes da observada nos óxidos de alta temperatura crítica como o Bi2212. É imperativo considerar que existam efeitos do ferromagnetismo das camadas de Ni sobre os vórtices além dos próprios efeitos de proximidade entre as camadas de Ni e Nb [12]. Devido a complexidade do problema, neste trabalho não foi possível aprofundar mais sobre a origem da linha $H_{dec}(T)$. Entretanto, conforme será mostrado mais adiante nas medidas para campo paralelo, existe uma transição dimensional do acoplamento supercondutor, a qual apresenta uma relação muito próxima com a linha de desacoplamento. Isto indica que possivelmente a linha de desacoplamento possa estar relacionada com a transição dimensional dos vórtices. Alguns aspectos gerais podem ser notados na figura 5.6b, como o início de $H_{dec}(T)$ em torno de T^* e sua aproximação gradual da linha $H_{c2\perp}(T)$. Outro detalhe da figura 5.6b é o interessante cruzamento das linhas $H_{dec}(T)$ e $H_{irr}(T)$ próximo de T^* para $H \approx 700$ Oe. A curva para $H = 700$ Oe é mostrada no detalhe, onde o ponto de divergência entre as curvas ZFC e FCC é quase igual ao ponto da segunda transição. Conforme será

mostrado no diagrama para o caso paralelo esse também é o ponto onde ocorre a transição dimensional. Esta é uma evidência de que a linha de irreversibilidade possa estar associada com o *depinning* ou a fusão de um sistema de vórtices 3D para $T > T^*$, ou de um sistema de panquecas de vórtices confinadas nas camadas de Nb para $T < T^*$.

Nas figuras 5.7 e 5.8, são apresentados os gráficos correspondentes às curvas $M \times H$ para campos aplicados variando entre -10 kOe a +10 kOe, para temperaturas fixas em 2 K e 10 K. As curvas foram feitas medindo-se duas vezes para cada valor de campo, com intervalo de 5 s entre as medidas. Com isso pôde-se observar uma pequena relaxação magnética. Em 5.7, a curva $M \times H$ é típica de um supercondutor tipo II, onde o estado misto predomina quase em todo o intervalo de campos aplicados, como é esperado desde que em geral o trecho Meissner é muito pequeno [12]. Isso é evidente na medida feita para o intervalos de campos

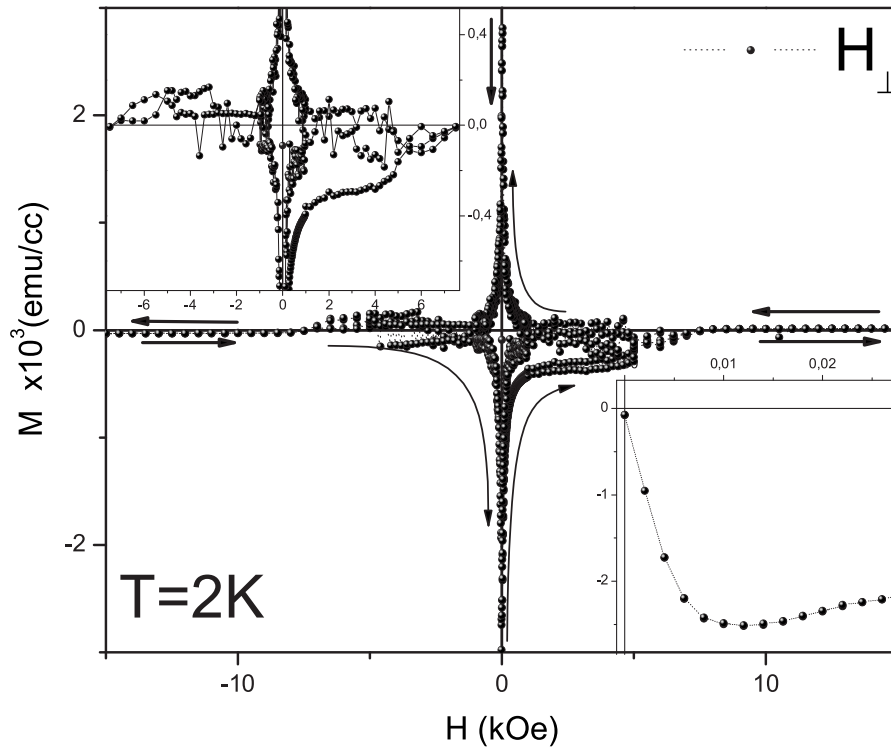


Figura 5.7: Curvas $M \times H$ para a amostra NiNb-A na orientação perpendicular para $T = 2$ K. A resposta é predominantemente supercondutora. No canto superior esquerdo é mostrada uma ampliação da região em torno de $H = 0$, onde fica evidente as instabilidades na magnetização. Para facilitar a visualização foi colocado apenas um ponto para cada valor de campo, sem as relaxações. No canto inferior direito é mostrada a região Meissner, a qual é confinada em campo menores do que 10 Oe. As setas indicam o sentido do aumento do campo aplicado.

extremamente baixos, que é mostrada no canto inferior direito da figura 5.8a, onde o campo crítico inferior é visto claramente ser menor do que 15 Oe. Outra característica importante desta curva, a qual é compartilhada por todas as amostras e é característico deste sistema, são as oscilações (ou flutuações) no momento magnético. Na canto superior esquerdo da figura 5.8a é mostrada uma ampliação do intervalo para $-6 \text{ kOe} < H < +6 \text{ kOe}$, onde são claras as flutuações na magnetização¹. Este efeito de flutuações é ainda mais proeminente nas demais medidas, principalmente para temperaturas mais elevadas e na orientação paralela, onde o magnetismo das camadas de Ni é mais intenso. Na figura 5.8, é apresentado o resultado para $T = 10 \text{ K}$. Nesta temperatura a resposta supercondutora é inexistente, tendo em vista que a temperatura crítica das camadas de Nb está situada torno de 6,9 K, conforme mencionado anteriormente. Por esta razão, as camadas de Ni dominam a resposta magnética conforme é notado pela característica ferromagnética da curva, como mostra a figura 5.8a. Na figura 5.8b é mostrado uma ampliação da região em torno de $\pm 1 \text{ kOe}$, onde fica claro o caráter reversível da curva ainda na presença das instabilidades. Uma hipótese para explicar este comportamento é que a direção perpendicular apresenta uma dificuldade maior em reverter os domínios comparado ao eixo paralelo às camadas, figura 5.12b.

Por outro lado, a saturação do momento das camadas de Ni é vista ser melhor definida, permitindo determinar um valor de magnetização de saturação, M_s , de aproximadamente 6,49 emu/cc. Desde que este valor corresponde ao volume total do filme, e as camadas de Nb não contribuem, o valor mais correto é $M_s = 75 \text{ emu/cc}$ de Ni, considerando apenas as 10 camadas de Ni que compõe a amostra NiNb-A. Além disso, estas camadas estão desacopladas pelas camadas de Nb para $t_{\text{Nb}} \approx 230 \text{ \AA}$, conforme mencionado na literatura [1]. Este é um valor aproximado, desde que na orientação perpendicular ao campo, os efeitos de desmagnetização são consideráveis de modo que o valor real da magnetização pode ser consideravelmente menor. O valor de M_s para o Ni com dimensões macroscópicas é aproximadamente 500 emu/cc [1], que é bem maior comparado ao valor obtido para a amostra NiNb-A. Isto pode estar relacionado a dois fatores principais: primeiro que as camadas de Nb são muito espessas não permitindo um acoplamento magnético entre as camadas de Ni, e em segundo, os efeitos de proximidade entre Nb e Ni podem suprimir parcialmente o ferromagnetismo apresentado por estas camadas. Isto se deve a interdifusão dos átomos de Nb e Ni na interface, fazendo com que a correlação eletrônica nesta região seja reduzida.

¹Nesta ampliação é mostrado a curva com um ponto para cada valor de campo para facilitar a visualização (sem as relaxações)

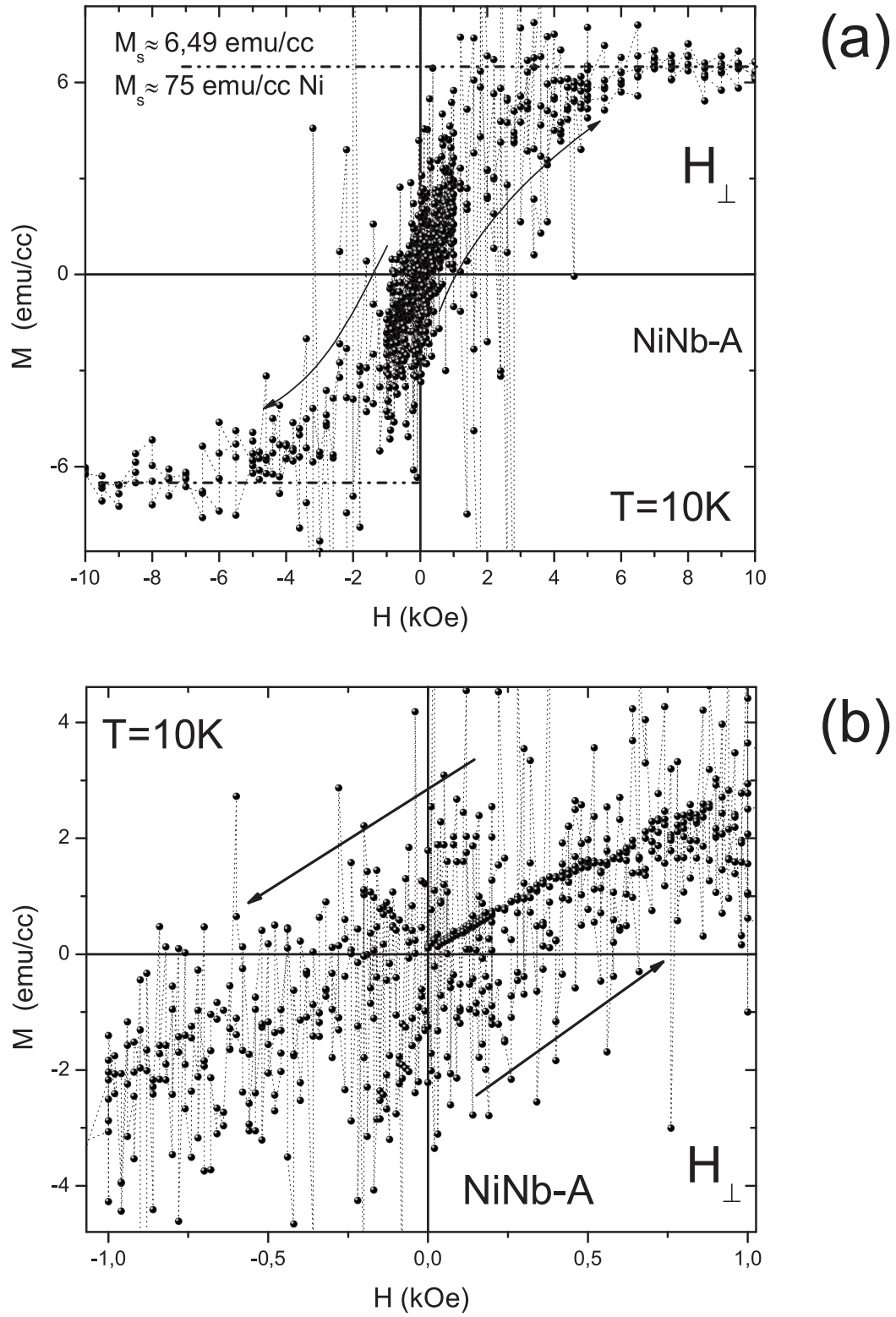


Figura 5.8: Curvas $M \times H$ para a amostra NiNb-A na orientação perpendicular. (a) Para temperatura de $T = 10\text{ K}$, onde a resposta é ferromagnética. (b) Ampliação da região em torno de $\pm 1\text{ kOe}$ onde fica clara a reversibilidade da curva. As setas indicam o sentido do aumento do campo aplicado.

Orientação Paralela

De modo geral, as medidas para o campo magnético aplicado paralelamente às camadas do filme apresentam uma riqueza maior de informações pois conforme discutido nos primeiros capítulos, a limitação do comprimento de coerência $\xi_{\perp}(T)$ pelo tamanho finito da camada de Nb exerce uma forte influência sobre o campo crítico superior [12]. Além disso, dentro do contexto de efeito de proximidade, é esperado uma influência ainda maior do ferromagnetismo das camadas de Ni sobre as propriedades supercondutoras, desde que agora as órbitas descritas pelos pares de Cooper não estão mais confinadas aos planos de Nb, podendo haver um tunelamento de pares através das camadas de Ni. Além disso, o próprio ferromagnetismo deve apresentar uma intensidade maior nesta orientação, uma vez que o ordenamento magnético pode ser estabelecido sobre uma distância bem grande em relação à escala de tamanho dos domínios magnéticos, na direção paralela aos planos.

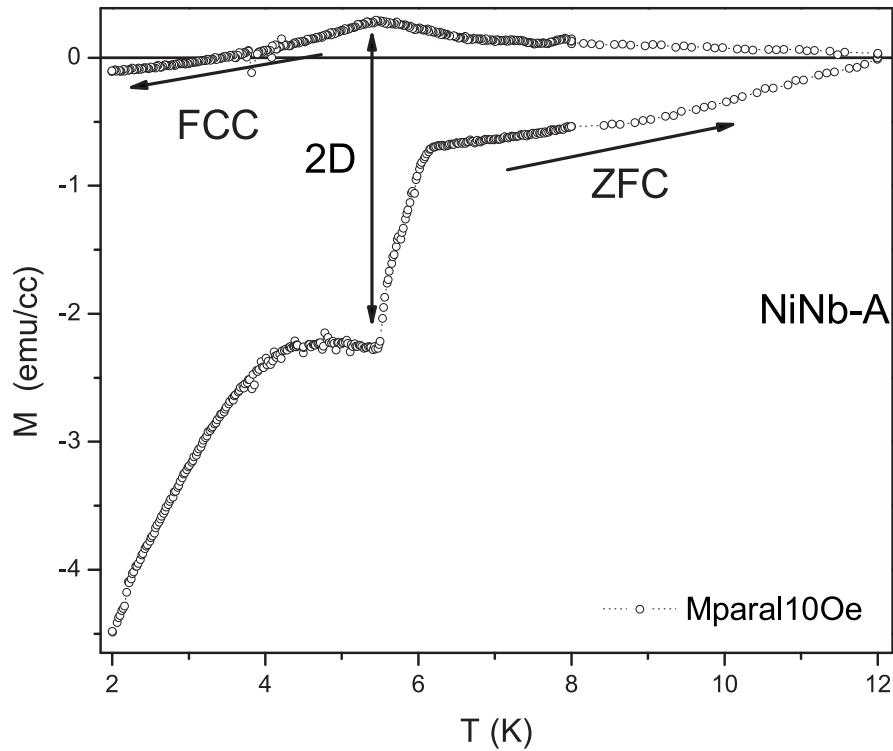


Figura 5.9: Curva $M \times T$ para a amostra NiNb-A em um campo paralelo de 10 Oe onde é evidenciado uma segunda transição, possivelmente atribuída a uma mudança na dimensionalidade do acoplamento supercondutor conforme discutido no texto.

Na figura 5.9 é apresentada a curva $M \times T$ para um campo aplicado de 10 Oe mostrando $T_c \approx 7$ K.

Assim como no caso do campo aplicado perpendicularmente às camadas, é complicado definir exatamente a transição supercondutora devido a esta apresentar uma forma arredondada. Uma característica peculiar destas curvas é a presença de uma segunda transição numa temperatura mais baixa. Conforme mostra a figura 5.5a, para o caso perpendicular, não se observa outro tipo de transição para campos abaixo de 100 Oe. Portanto, a física associada à transição da figura 5.9 e 5.10 deve ser diferente daquela do caso perpendicular. Na orientação paralela, os vórtices apresentam um caráter contínuo, pois não existem limitações geométricas sobre as camadas supercondutoras na direção das linhas de fluxo. É interessante notar que a mesma transição pode ser observada em ambos os regimes ZFC e FCC, sendo que em campos mais elevados, a mudança no comportamento das curvas não permite a observação da transição nas curvas ZFC, de modo que a transição é apenas observada no regime FCC.

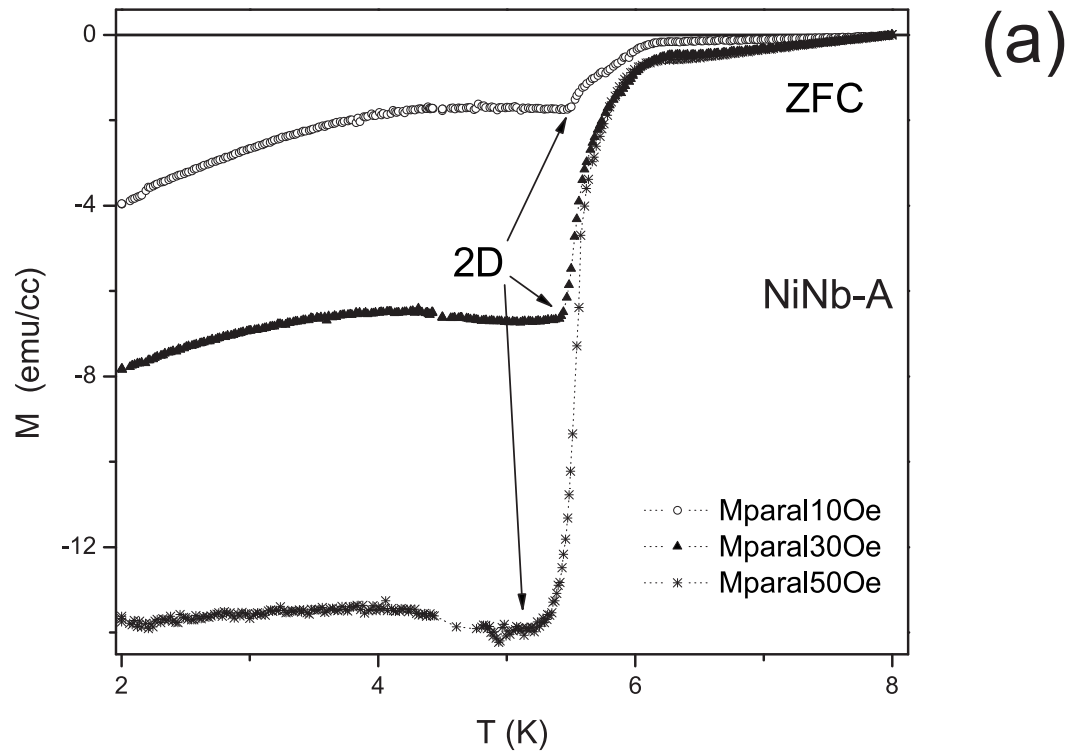


Figura 5.10: (a) Transição dimensional para outros campos aplicados. Para campos um pouco mais altos fica evidente o desaparecimento da segunda transição no regime ZFC.

Na figura 5.10, a transição dimensional para outros campos é apresentada bem como o desaparecimento desta no regime ZFC. Na figura 5.10a, nota-se que a transição dimensional quase fica despercebida para um campo aplicado igual a 50 Oe. Dada a correspondência entre os picos nas curvas FCC e ZFC, como

mostrado na ZFC para 10 Oe, pode-se estimar com a ampliação na figura 5.10b, que a transição dimensional está em torno de 5,1 K e 5,5 K para campos iguais a 200 Oe e 100 Oe, respectivamente.

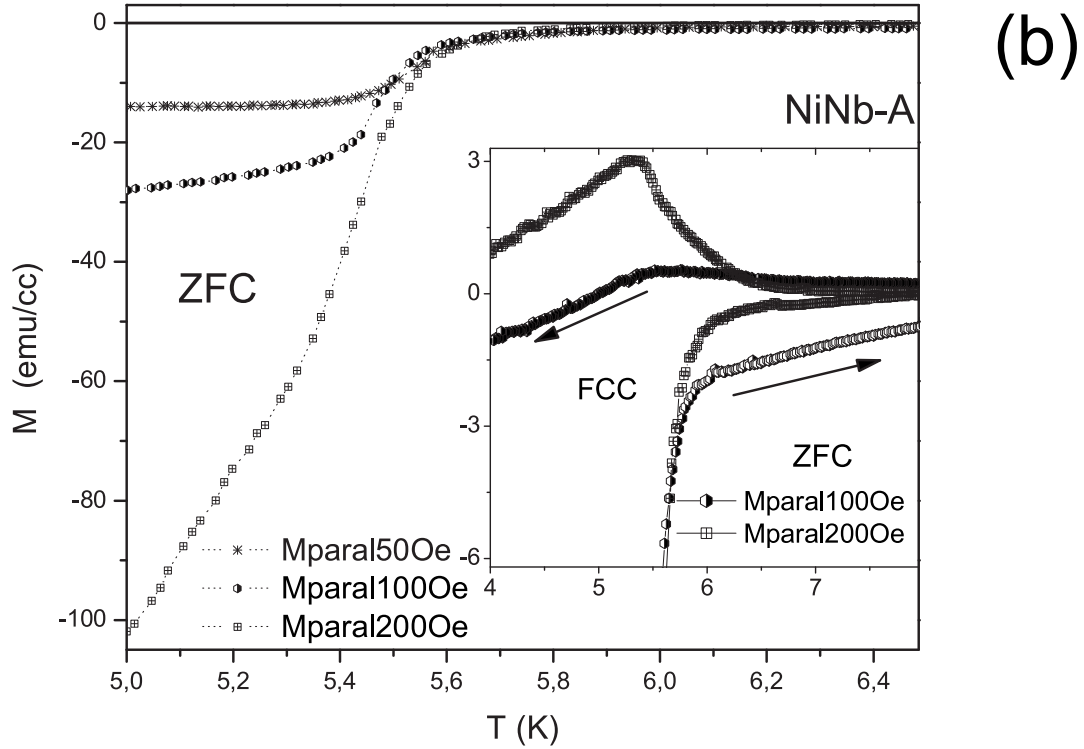


Figura 5.10: (continuação) (b) Transição dimensional para outros campos aplicados. Para campos acima de 100 Oe é necessário determinar a temperatura de transição dimensional pelo pico na curva FCC. Conforme mostrado na ampliação a transição ocorre em torno de 5,5 K e 5,1 K para campos de 100 Oe e 200 Oe, respectivamente.

Na figura 5.11, é apresentado o diagrama $H \times T$ para o caso de campos paralelos às multicamadas. Também são mostradas as curvas $H_{dec}(T)$ e $H_{c2\perp}(T)$ que já foram apresentadas na figura 5.6b. Os pontos experimentais em triângulos cheios correspondem aos dados para H aplicado paralelamente aos planos das camadas. Para temperaturas acima de 5,8 K, $H_{c2\parallel}(T)$ apresenta um comportamento linear, o que é esperado para um sistema com acoplamento tridimensional. Em torno de $T^* = 5,42$ K ocorre uma brusca mudança para um comportamento parabólico, conforme indica a linha tracejada que representa a equação $H_{c2\parallel}(T) = 27,8(1 - \frac{T}{5,38})^{1/2}$. Esta anomalia no comportamento de $H_{c2\parallel}(T)$ é interpretada como uma assinatura da transição de um comportamento tridimensional para um bidimensional [12]. Conforme mostrado na figura 5.6b, é em torno de T^* que ocorre o cruzamento entre as linhas de irreversibilidade e de

desacoplamento. Isto sugere que a transição dimensional verificada em $H_{c2||}(T)$ pode exercer forte influência sobre a dinâmica dos vórtices neste sistema, tanto para a orientação paralela quanto perpendicular do campo magnético. Além disso, o fato da linha de desacoplamento iniciar em torno de T^* é mais um indicativo de que ela esteja relacionada com a mudança no comportamento dos vórtices, para caso o caso perpendicular.

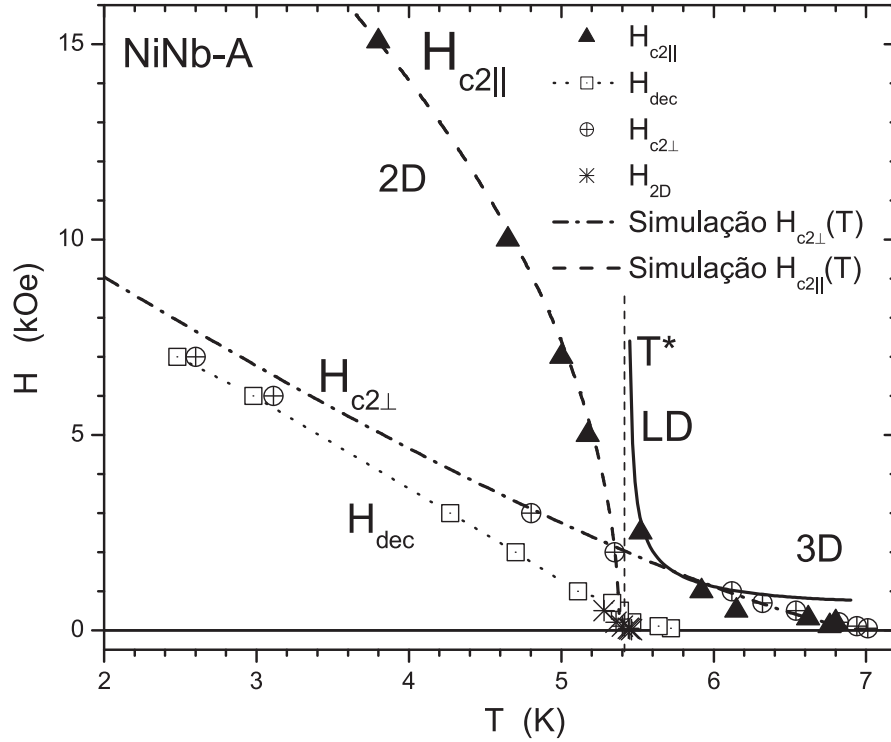


Figura 5.11: Diagrama $H \times T$ para a amostra NiNb-A para H paralelo às camadas do filme [56].

Uma interpretação interessante que pode ser feita a respeito da região de transição em torno de T^* , é obtida com o modelo de Lawrence-Doniach (LD) para camadas acopladas via efeito Josephson [29]. Este modelo é discutido com maiores detalhes no capítulo 2. Em termos gerais, a teoria de LD prevê uma divergência do campo crítico superior na região da transição dimensional. Com a redução do comprimento de coerência com a temperatura, em uma determinada temperatura T^* , os vórtices ajustam-se entre as camadas supercondutoras reduzindo os efeitos orbitais e deste modo a supercondutividade fica confinada nas camadas. Desta forma, a supercondutividade pode existir sob campos mais intensos o que é verificado por um aumento brusco na curva $H_{c2||}(T)$.

A equação que prevê o aumento brusco do campo crítico $H_{c2||}(T)$ é dada por 2.30 a qual é escrita

novamente abaixo,

$$H_{c2||}(T) \approx \frac{\xi_{||}(T)\xi_{\perp}(T)}{\Lambda^2 \left(1 - \frac{\Lambda^2 \xi_{\perp}(T)^2}{2}\right)^{1/2}} H_{c2\perp}(T),$$

onde $\xi_{||}(T) = \xi_{||}(0) \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{-\nu}$ e $\xi_{\perp}(T) = \xi_{\perp}(0) \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{-\nu}$ são os comprimentos de coerência paralelo e perpendicular às camadas de Nb, respectivamente, e o campo crítico $H_{c2\perp}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{||}(T)^2}$. O expoente crítico ν pode ser igual a 1/2 (regime de campo médio) ou 2/3 (regime de flutuações próximo a T_∂), e $\Phi_0 = 2,07 \times 10^{-7}$ G cm² é o quantum de fluxo [12]. Usando estas definições e o parâmetro de anisotropia, $\Gamma = \xi_{||}(0)/\xi_{\perp}(0)$, a equação acima pode ser reescrita na forma:

$$H_{c2||}(T) \approx \frac{\Phi_0}{2\pi\Gamma\Lambda^2 \left(1 - \Lambda^2 (1 - T/T_c)^{2\nu} / 2\xi_{\perp}(0)^2\right)^{1/2}}. \quad (5.1)$$

Na figura 5.11 a linha sólida rotulada com LD é uma simulação da equação 5.1 com os parâmetros dados por: $\xi_{\perp}(0) = 62$ Å, $\Gamma = 6,6$, $\nu = 2/3$, $T_c = 6,9$ K e $\Lambda = 250$ Å. Estes valores de T_c e Λ estão dentro de 1% daqueles determinados experimentalmente. A anisotropia relativamente alta implica que o comprimento de coerência no plano é de $\xi_{||}(0) = 409$ Å, valor típico de uma amostra macroscópica pura de Nb. A escolha do expoente crítico igual a $\nu = 2/3$ se deve ao fato deste produzir uma simulação melhor do que aquela obtida com $\nu = 1/2$. Isto significa que as flutuações térmicas exercem um efeito importante sobre as propriedades supercondutoras para $T > T^*$. Isto é um comportamento esperado em sistemas com dimensionalidade reduzida [62]. Conforme mostrado pela linha traço-pontilhada da figura 5.11, os pontos experimentais de $H_{c2\perp}$ são bem ajustados com a função $H_{c2\perp}(T) = 14 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{2\nu}$, com $\nu = 2/3$ e $T_c = 7$ K, no intervalo $T > T^*$. Portanto, para $T > T^*$ é observado uma curvatura positiva de $H_{c2\perp}$ em vez do comportamento linear esperado da teoria de GL. Este comportamento anômalo tem sido observado em inúmeros trabalhos envolvendo sistemas de multicamadas (por exemplo: [13, 63, 64]), sendo em geral atribuído ao caráter granular do sistema multicamadas. Entretanto, para uma melhor verificação da causa deste efeito é necessário que sejam feitas medidas de transporte eletrônico [60, 65].

Em 1971, foi proposto [29] que o aumento anômalo de $H_{c2||}(T)$ em torno de T^* acontece quando o comprimento de coerência perpendicular $\xi_{\perp}(T)$ diminui a um valor que permite que os núcleos dos vórtices ajustem-se entre as camadas supercondutoras, promovendo portanto, a redução dos mecanismos de quebra de pares de Cooper devido aos efeitos orbitais dos elétrons [29]. Esta situação especial ocorre quando $\xi_{\perp}(T^*) = \Lambda/\sqrt{2}$, valor este que faz as equações 2.30 e 5.1 divergirem assintoticamente para o infinito quando a temperatura aproxima-se de $T^* = 5.42$ K. Isto implica que para $T < T^*$ o comprimento de coerência

perpendicular às camadas torna-se menor do que Λ e, desta forma, suprime o acoplamento entre as camadas de Nb estabelecendo um regime bidimensional. Entretanto, os pontos experimentais para $H_{c2\perp}(T)$ ainda mantêm o comportamento aproximadamente linear esperado para um regime tridimensional, tendo em vista que não existem restrições geométricas sobre $\xi_{\parallel}(T)$. É importante lembrar que o campo $H_{c2\perp}(T)$ depende apenas de $\xi_{\parallel}(T)$. No caso da amostra NiNb-A, onde $\Lambda \approx 251$ Å pela análise de raios X, pode-se calcular $\xi_{\perp}(T^*) = \Lambda/\sqrt{2} \approx 177$ Å, em razoável concordância com os valores calculados pela relação $\xi_{\perp}(T^*) = 62(1 - 5,42/6,9)^{-2/3} \approx 174$ Å. Este resultado corrobora fortemente a hipótese de transição dimensional, conforme já discutido.

Na região em torno de 5,4 K, existem ainda mais evidências dos efeitos de transição dimensional, mostrado na figura 5.11. Os pontos experimentais rotulados com H_{2D} (asteriscos) são correspondentes às transições mostradas nas figuras 5.9 e 5.10a,b. É notável que estes pontos experimentais estejam situados na extrapolação do ajuste parabólico realizado nos pontos de $H_{c2\parallel}$, para $T < T^*$. Isto indica que possivelmente exista um regime bidimensional dos vórtices para temperaturas abaixo deste pontos H_{2D} . Este resultado parece confirmar que um sistema diluído de vórtices ($H_{\parallel} < 500$ Oe) favorece a observação de uma transição 3D→2D numa temperatura menor do que T_c , como mostrado nas figuras 5.9 e 5.10a,b. Entretanto, é necessário um estudo mais sistemático deste comportamento, para determinar a física que rege este fenômeno.

Na figura 5.12, são apresentadas as curvas MxH para a amostra NiNb-A na orientação paralela às camadas de Ni e Nb. Existem algumas mudanças fundamentais nestas curvas quando comparadas com os dados da figura 5.8. Primeiramente, existe a ocorrência de um salto no valor da magnetização para o campo com módulo igual a 4,92 kOe, para a curva da figura 5.12a. Este salto está associado com uma deficiência no algoritmo de processamento dos dados do sistema de detecção do magnetômetro SQUID, usado para fazer as medidas.

Em termos gerais, para determinar o valor do momento magnético, o sistema de processamento do magnetômetro realiza uma operação de integração do potencial elétrico induzido pela movimentação da amostra [51]. Em geral, a forma do potencial como função da posição é dada como mostrado na figura 4.1 do capítulo 3. Isto é, o potencial apresenta apenas um extremo central (ponto de máximo ou de mínimo) de modo que o valor do momento é bem definido. No caso do sistema multicamadas de Ni/Nb, quando o valor do campo aplicado vai aproximando-se da região próxima a 4,92 kOe, começa a surgir um segundo extremo na curva do potencial, cuja amplitude cresce gradualmente com o campo. Assim, o sinal e valor do momento da amostra fica dependente de qual dos dois extremos é mais intenso. É importante observar aqui, que este novo extremo apresenta concavidade contrária à do primeiro, de modo que a curva do po-

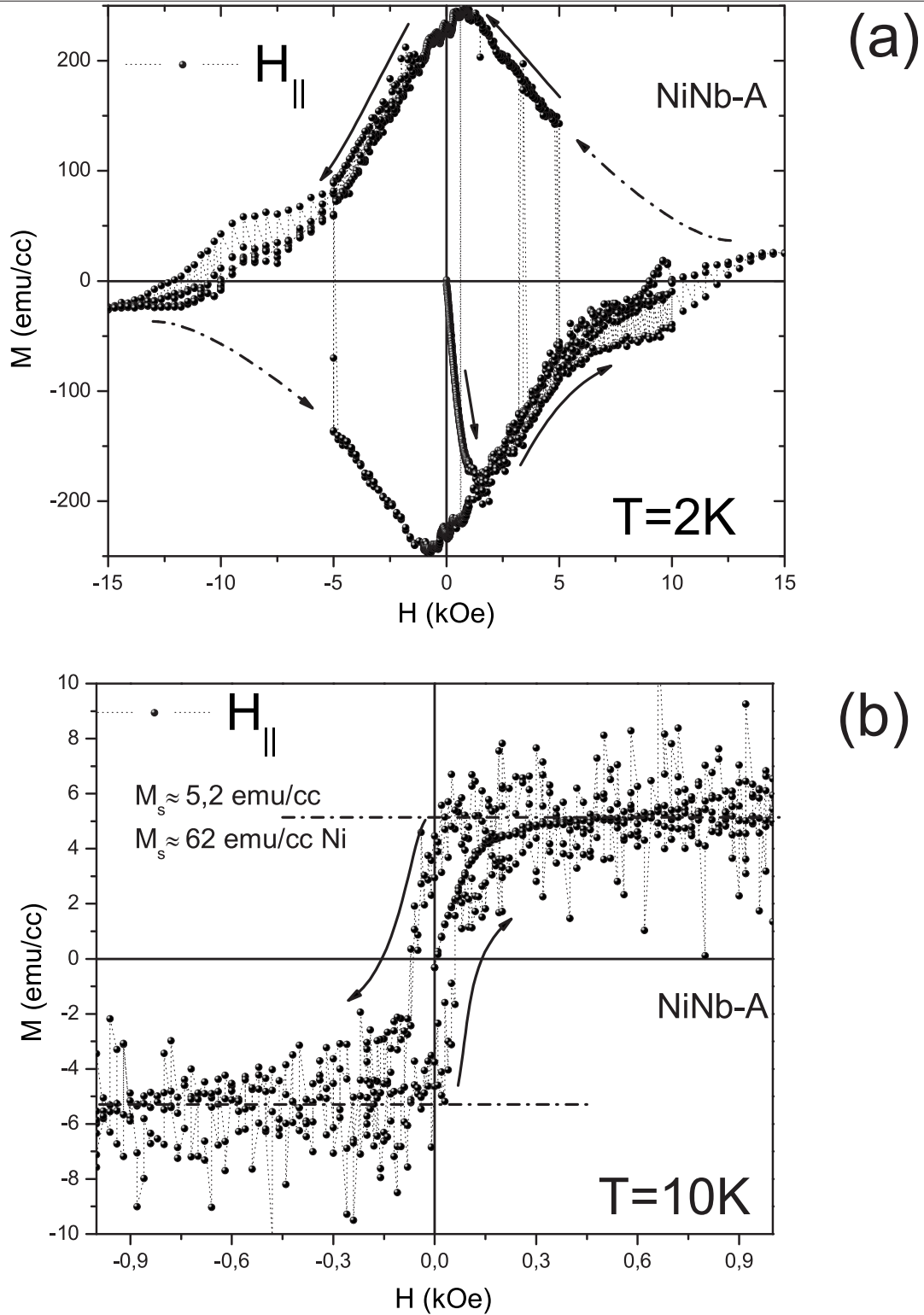


Figura 5.12: Curvas $M \times H$ para a amostra NiNb-A na orientação paralela. As setas em linha sólida indicam o sentido da variação do campo. (a) Para temperatura de $T = 2\text{ K}$, onde o sinal supercondutor predomina. As setas traço-pontilhadas indicam como seria a forma da curva na ausência de saltos. (b) Para $T = 10\text{ K}$ (acima de T_d), onde o sinal ferromagnético é observado.

-tencial assemelha-se a uma senóide. No momento em que se atinge $H = 4,92$ kOe, a amplitude do segundo extremo torna-se maior do que o do primeiro e ocorre o salto no valor do momento magnético. Uma possibilidade de contornar este problema, seria fazer as medidas com a opção RSO (Reciprocating Sample Option), a qual é oferecida no magnetômetro MPMS-5 da *Quantum Design*, utilizado para fazer as medidas. Neste caso, a amostra é movimentada em uma distância muito pequena e, portanto, o segundo extremo poderia não ser considerado no procedimento de integração. Entretanto, devido a problemas técnicos na cabeça de movimentação do sistema RSO, não foi possível realizar as medidas nesta opção. Por outro lado, existem ainda oscilações na magnetização ao longo de toda a curva, e estas são intrínsecas do sistema multicamadas. Também são visíveis as relaxações magnéticas do sistema, evidenciando as instabilidades no módulo do momento magnético das camadas de Ni.

Outra diferença fundamental em comparação com a orientação perpendicular, está na figura 5.12b para $T = 10$ K. Nesta curva o valor do campo coercivo (H_c) pode ser razoavelmente definido como sendo aproximadamente 60 Oe. Isto indica que a direção do momento magnético das camadas de Ni pode ser invertida num intervalo de variação de campo de 60 Oe, que é um valor relativamente baixo. Isto parece razoável para um sistema magneticamente instável conforme mostrado até agora. O valor da magnetização de saturação M_s , considerando apenas o volume das camadas de Ni, é de 62 emu/cc de Ni. Este é mais próximo do real valor da magnetização das camadas de Ni dado que, nesta orientação, os efeitos de desmagnetização são desprezíveis. Embora o valor obtido para o caso perpendicular seja maior comparado ao caso paralelo, o primeiro inclui o fator de desmagnetização e, assim, o ferromagnetismo é mais proeminente na direção paralela. Outro fator que reforça esta hipótese é campo coercivo apresentar um valor bem definido no caso paralelo, e no caso perpendicular este ser próximo de zero, dado que a curva é aproximadamente reversível. Isto é uma indicação de que a orientação paralela apresenta uma dificuldade menor em inverter a orientação dos domínios do Ni, comparando com a orientação perpendicular.

5.2.3 Amostra NiNb-B

Até agora foram discutidos os dados para a amostra NiNb-A. Esta apresentou efeitos interessantes, sobretudo com relação às transições dimensionais. No caso da amostra NiNb-B, a principal diferença está na espessura da camada de Nb, a qual é reduzida para 139,4 Å, de acordo com a análise de raios X. Embora este valor possa ser considerado grande em relação à espessura da camada de Ni ($t_{\text{Ni}} \approx 19$ Å), é esperado uma mudança sensível nas propriedades supercondutoras devido ao longo comprimento de coerência supercondutor. Sabe-se que para amostras com dimensões próximas ou menores que $\xi(T)$ os efeitos de tamanho finito começam a influenciar as propriedades de um material supercondutor [12]. Isto

poderia explicar porque um decréscimo de aproximadamente $100 \text{ \AA}$ em t_{Nb} pode resultar no predomínio da resposta magnética das camadas de Ni, na orientação paralela ao campo. Por esta razão, não foi possível fazer uma análise detalhada da supercondutividade em NiNb-B tal como a realizada na amostra NiNb-A. Outros fatores limitantes, os quais afetam ambas as orientações, são a redução da temperatura crítica para aproximadamente 4,11 K, e o intervalo de campos críticos terem sido restritos até um valor máximo em torno de 600 Oe.

Na figura, 5.13a são apresentadas algumas das curvas $M \times T$, no regime ZFC, para a orientação perpendicular. Estas são típicas de um sistema superconductor, as quais não apresentam características especiais como no caso da amostra NiNb-A. É mostrada também a curva de 1 kOe a qual não apresenta transição supercondutora até 2 K, de modo que a supercondutividade está confinada em um intervalo de campos baixos. Na 5.13b, são apresentadas duas curvas para campos de 100 Oe e 600 Oe, nos regimes ZFC e FCC. Um detalhe interessante dessas curvas é a irreversibilidade a qual ocorre, para o caso de 600 Oe, acima da temperatura de transição, em torno de 12 K. Para campos mais elevados a separação das curvas ocorre para temperaturas mais altas, mostrando o forte efeito do ferromagnetismo do Ni neste sistema.

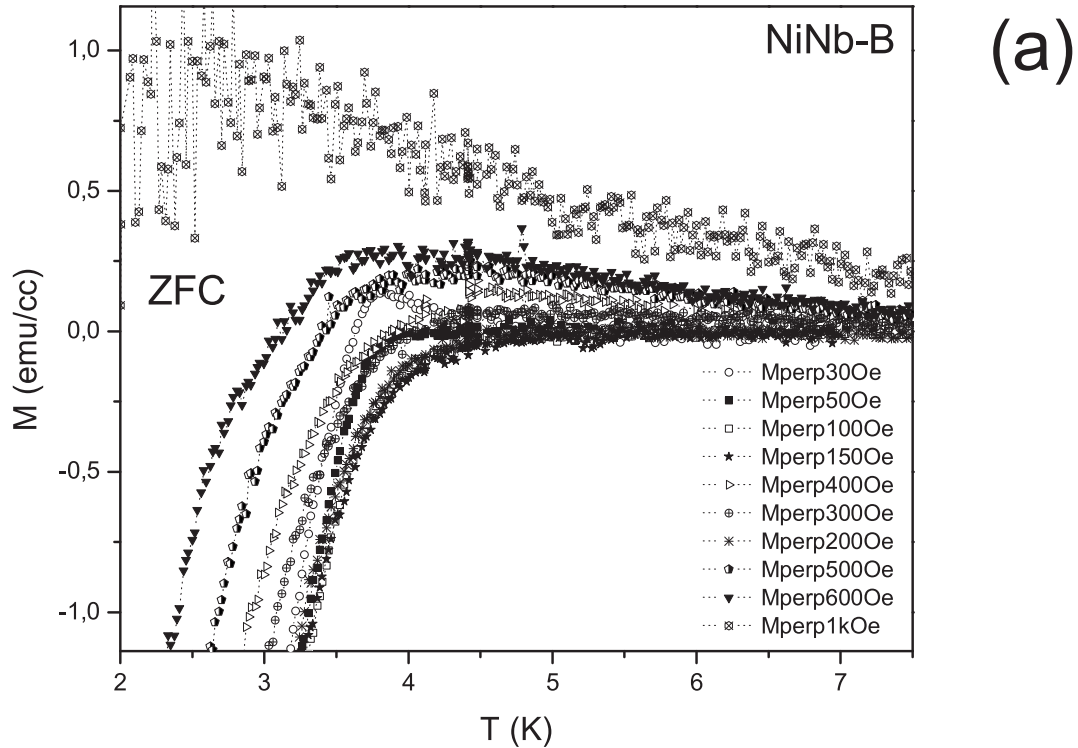


Figura 5.13: Curvas $M \times T$ para a amostra NiNb-B. (a) Curvas ZFC para $H_{\perp}$, onde fica evidente a transição supercondutora. A curva para o campo de 1 kOe não apresenta transição para o estado superconductor.

Comparando essas curvas com os resultados para a amostra NiNb-A, observa-se que não ocorre a transição de desacoplamento. Isto pode ser explicado pelo fato da supercondutividade ser suprimida em campos menores do que o campo necessário para induzir esta transição [16]. Porém, isto não exclui a possibilidade de transição dimensional, já que a mesma está ligada à variação do comprimento de coerência perpendicular as camadas de Nb.

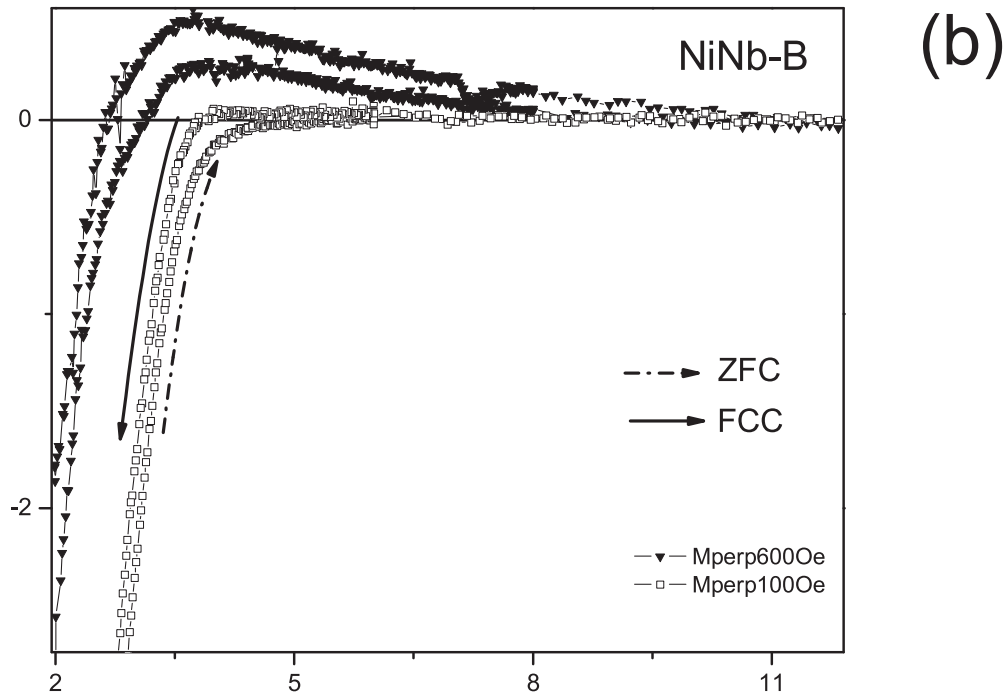


Figura 5.13: (*continuação*). Curvas $M \times T$ para a amostra NiNb-B. (b) Curvas para campos de 100 Oe e 600 Oe, em ambos os regimes, ZFC-FCC. Na curva de 600 Oe fica clara a irreversibilidade desde 12K, mostrando a forte influência magnética das camadas de Ni.

Na figura 5.14, são mostradas as curvas $M \times T$ para a orientação paralela ao campo aplicado em relação às camadas. Estas apresentam de forma clara os efeitos do ferromagnetismo sobre a transição supercondutora. Na figura 5.14a são mostradas as curvas ZFC e FCC para um campo aplicado igual a 200 Oe. Nota-se que na ZFC não foi possível identificar com clareza a transição supercondutora como foi no caso das medidas para o campo perpendicular. Uma possível explicação pode ser associada a magnetização das camadas de Ni. Considerando que inicialmente os domínios magnéticos das camadas de Ni estão dispostos em um arranjo alternado, então com o aumento da temperatura estes domínios são desbloqueados e passam a se alinhar com o campo aplicado. Isto resulta em um aumento da magnetização com a temperatura, como

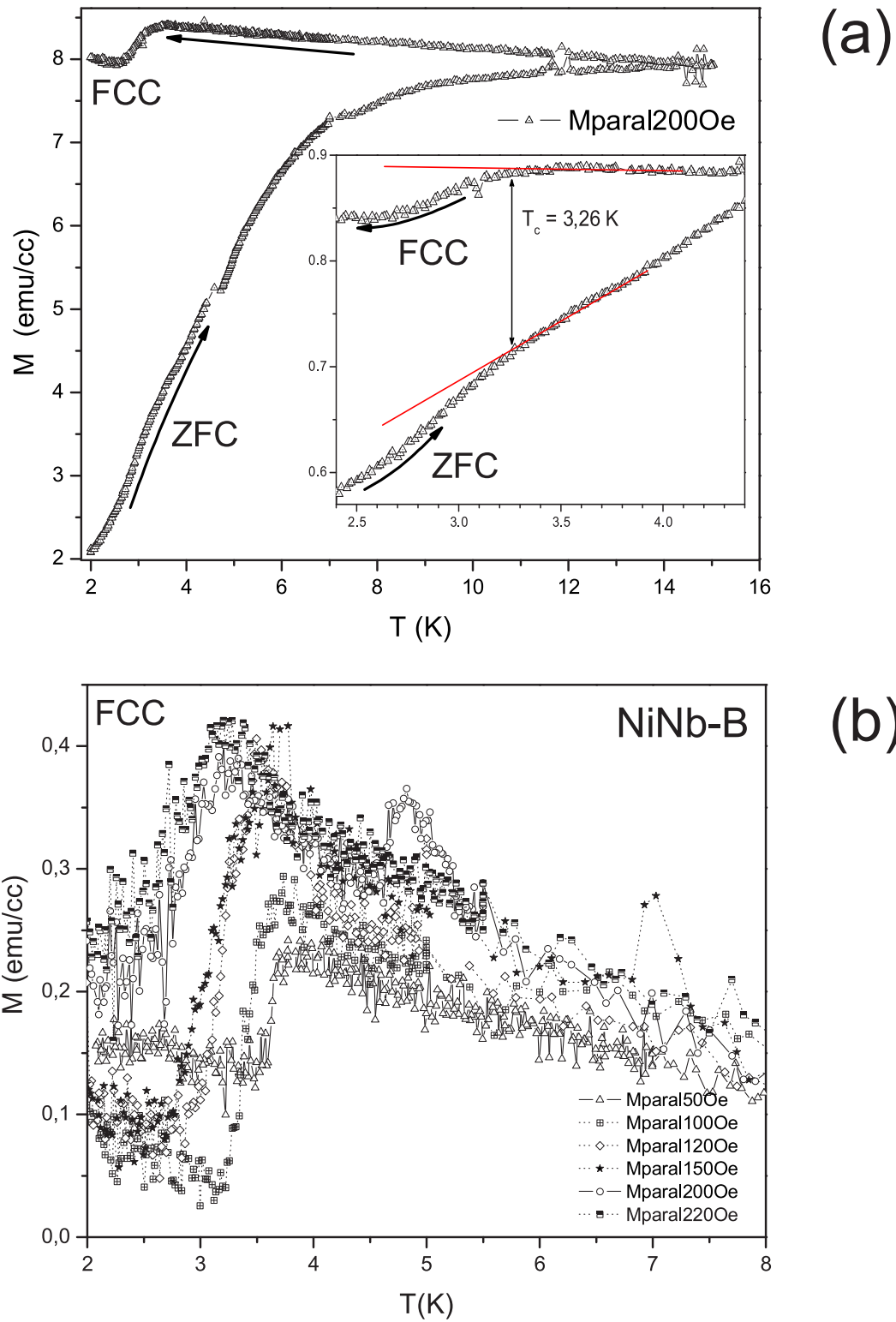


Figura 5.14: Curvas $M \times T$ para a amostra NiNb-B na orientação paralela. (a) Curvas ZFC-FCC para um campo de 200 Oe a transição para o estado supercondutor fica mais clara no regime FCC. No detalhe é mostrada a correspondência da transição supercondutora em ambos os regimes. (b) Algumas curvas no regime FCC, que foram usadas para determinar a linha $H_{c2}(T)$.

observado no trecho ZFC da curva de 200 Oe na figura 5.14a. Nota-se que a magnetização quase atinge um valor de saturação próximo de 12 K. Na descida (FCC) os domínios permanecem alinhados não ocorrendo uma grande variação da magnetização. Portanto, dentro desta hipótese, somente no trecho ZFC ocorre mudanças significativas na magnetização global devido a contribuição do Ni, mascarando a transição supercondutora que também contribui para a sinal magnético medido. No trecho FCC fica claro uma transição abrupta na região em torno de 3 K. No detalhe da figura 5.14a, é mostrada uma ampliação das curvas ZFC-FCC no intervalo de 2,5 K a 4 K. Observa-se que a transição abrupta corresponde a uma mudança na inclinação da curva ZFC, como indicado pelas retas auxiliares. Todas as curvas FCC medidas apresentaram uma queda abrupta para temperaturas abaixo de 4,11 K. A esta queda foi atribuída a transição para o estado supercondutor, desde que a mesma está situada em um intervalo de temperatura consistente com o esperado, ou seja, com um T_c menor do que o apresentado pela amostra NiNb-A. Esta transição também é deslocada para temperaturas menores a medida que o campo aplicado é elevado, desaparecendo para campo superiores a 650 Oe. Isto está de acordo com o comportamento de uma transição supercondutora. Algumas curvas FCC evidenciando a transição abrupta são apresentadas na figura 5.14b.

Graficando os pontos onde ocorre a transição abrupta, foi possível construir a linha $H_{c2||}(T)$ para a amostra NiNb-B, a qual é apresentada na figura 5.15. Também é mostrada a linha $H_{c2\perp}(T)$ para o caso perpendicular. Na figura 5.15 observa-se que existe uma transição 3D-2D de modo semelhante ao que ocorreu com a amostra NiNb-A. Entretanto, a temperatura de transição T^* foi de 3,25 K. Neste caso não foi possível fazer um tratamento mais quantitativo da transição dimensional usando o modelo de Lawrence-Doniach, o que se atribui ao fato do Ni apresentar uma influência maior no comportamento supercondutor. Possivelmente os efeitos de quebra de pares de Cooper, os quais não são considerados no modelo de LD, devem dominar a física da transição dimensional [31]. O campo crítico perpendicular apresenta novamente uma pequena curvatura positiva, o que já foi discutido anteriormente. Isso é verificado pelo ótimo ajuste dos pontos experimentais de $H_{c2\perp}(T)$ pela equação indicada na figura 5.15, com o expoente 1,1.

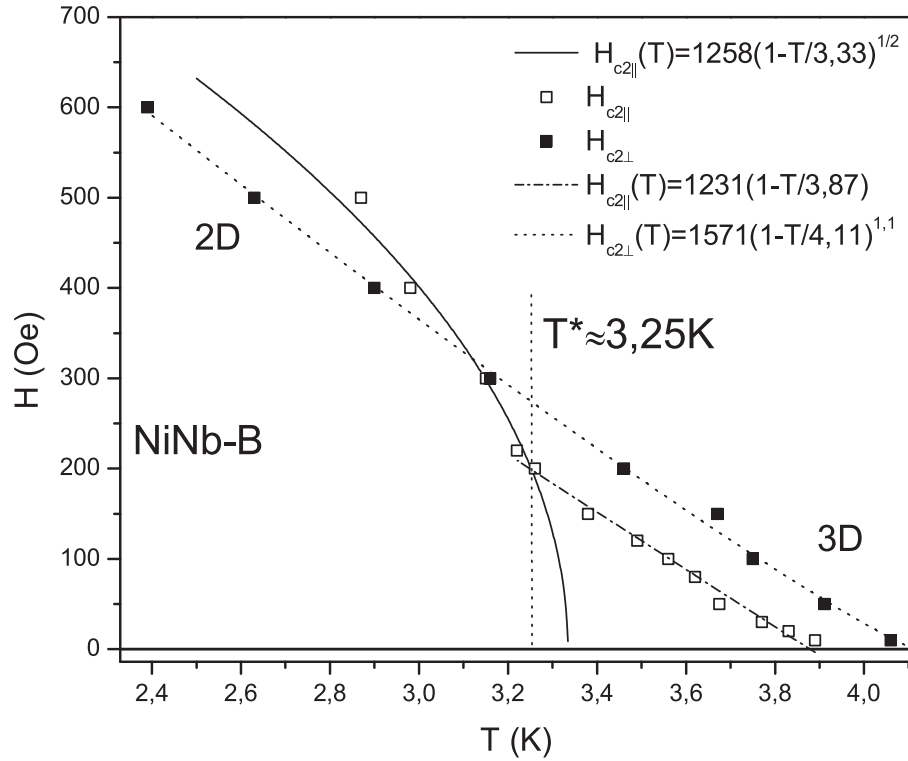


Figura 5.15: Diagrama $H \times T$ para a amostra NiNb-B. No caso paralelo é claro uma transição dimensional em 3,25 K. O comportamento bidimensional é bem ajustado pela curva parabólica conforme mostrado. No caso perpendicular o comportamento é aproximadamente linear com uma pequena curvatura positiva, o que é verificado pelo ajuste com expoente 1,1.

Na figura 5.16 são mostradas as curvas $M \times H$ para a orientação perpendicular e paralela, em uma temperatura igual a 2 K. Nestas curvas não foi observado sinal supercondutor como foi observado para a amostra NiNb-A. Isto mostra o grande efeito da redução da espessura da camada de Nb. Além disso, a magnetização de saturação por volume de Ni apresenta valores muito elevados neste caso, sendo uma ordem de grandeza maior quando comparado ao caso da amostra NiNb-A. Para $T = 10\text{ K}$, as histereses também revelaram uma transição ferromagnética, o que é esperado, desde que o Nb não apresenta transição supercondutora neste valor de temperatura. Estas curvas não são mostradas aqui, pois apresentam um comportamento semelhante ao verificado em 2 K.

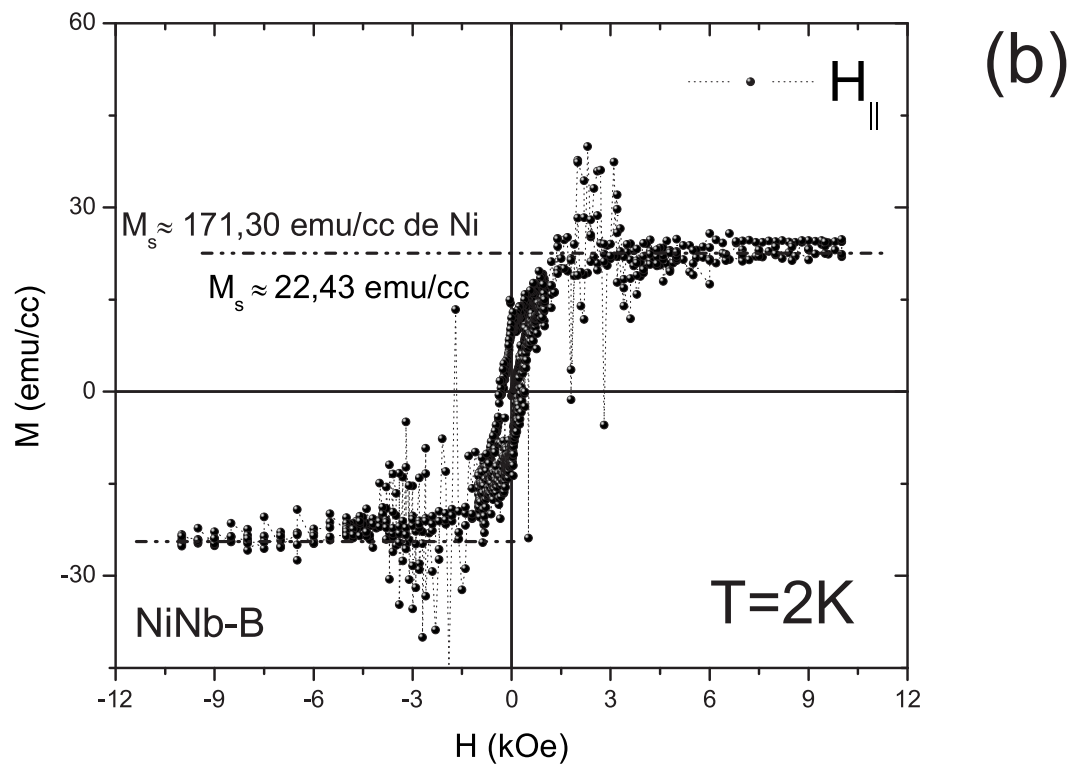
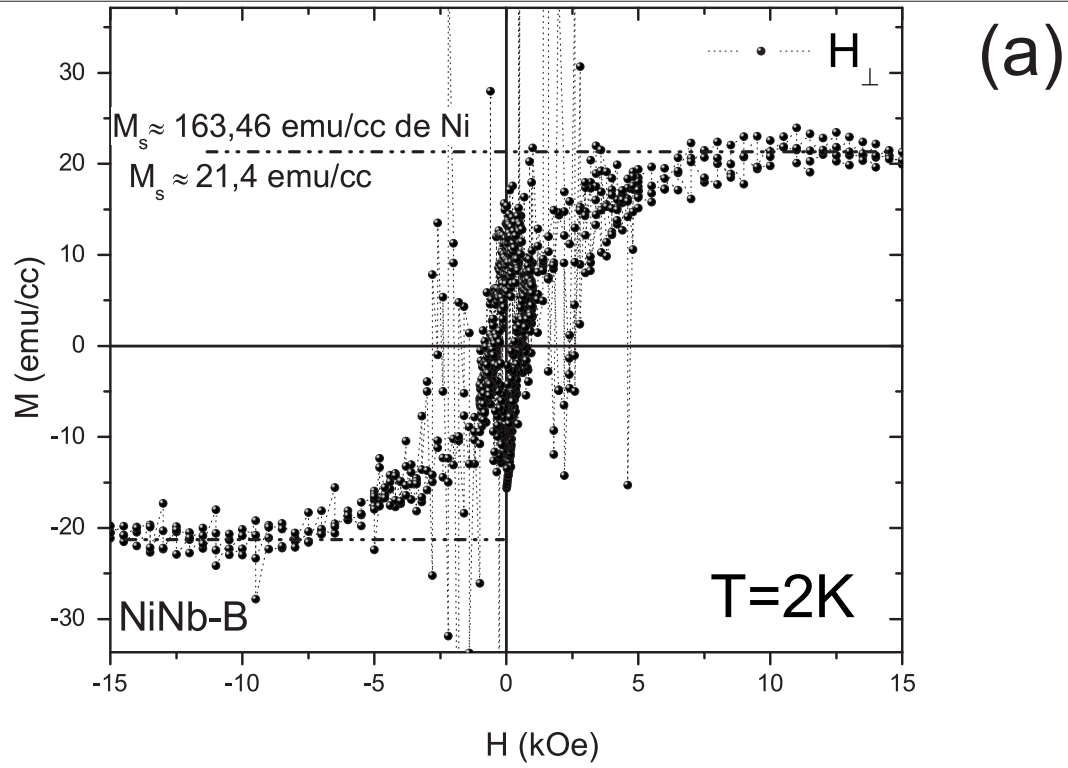


Figura 5.16: Curva $M \times H$ para a amostra NiNb-B na orientação perpendicular (figura a) e paralela (figura b) ao campo. É verificado um comportamento ferromagnético mesmo abaixo da temperatura de transição supercondutora.

Na figura 5.17 são mostrados alguns testes realizados com a amostra NiNb-B , com o objetivo de explorar a questão das instabilidades no momento magnético as quais estão presentes em todas as amostras. Na figura 5.17a, é mostrado o trecho de 0 Oe a 800 Oe da curva MxH para amostra NiNb-B , em uma temperatura de 2 K. Neste intervalo de campo as relaxações do momento magnético são bem evidentes, as quais vão diminuindo com o aumento do campo magnético aplicado. Além disso o campo crítico $H_{c2}(T)$ é mostrado como sendo aproximadamente 740 Oe. Na figura 5.17b, são mostradas quatro curvas MxH (rotuladas H_1 , H_2 , H_3 e H_4) as quais estão espaçadas verticalmente em aproximadamente 10 emu/cc para facilitar a visualização. Estas medidas apresentam diferentes histórias magnéticas, mas mesmo sob estas diferentes condições é possível verificar que as instabilidades na magnetização apresentam um caráter sistemático.

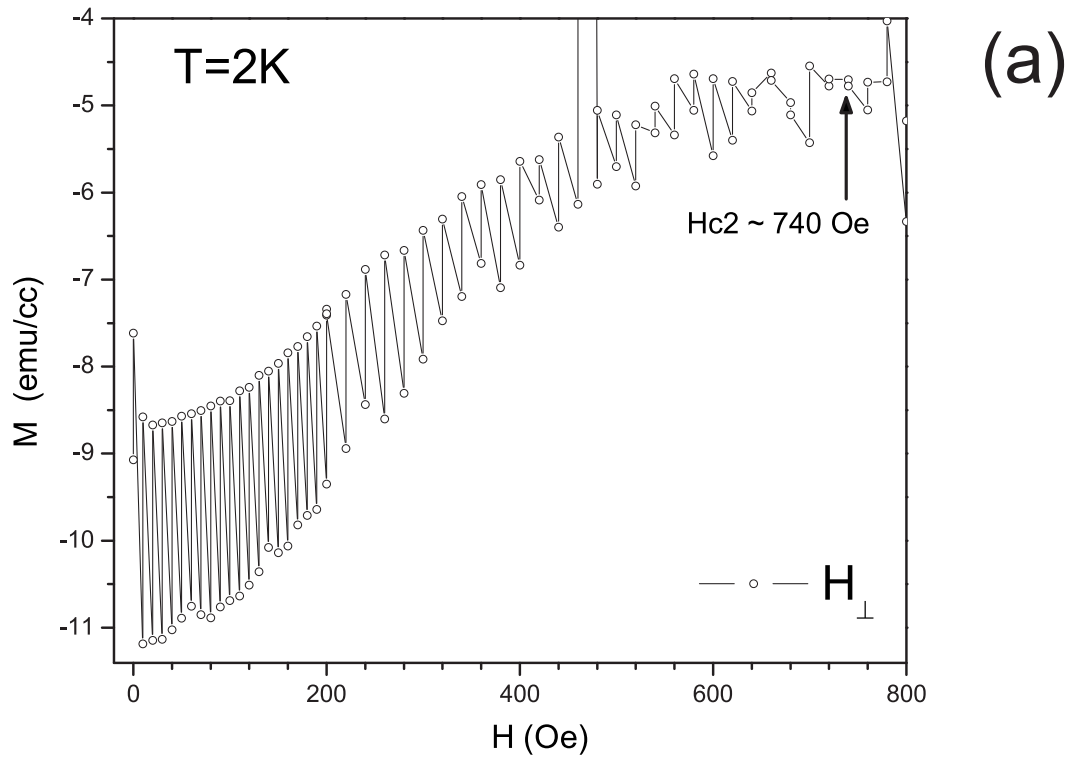
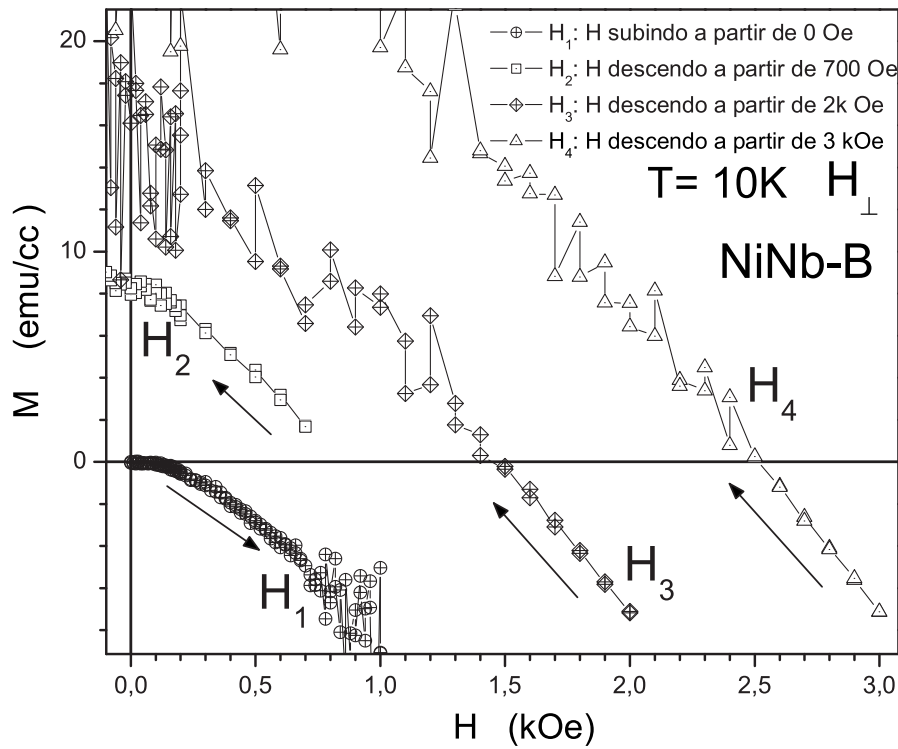


Figura 5.17: Curvas MxH para amostra NiNb-B . (a) É mostrado o trecho inicial da curva, para $T = 2$ K, onde se observa relaxações magnéticas do momento. Para cada valor de campo foram tomadas duas medidas.

A curva H_1 , foi obtida elevando-se o campo magnético aplicado desde zero, e nota-se que em torno de 700 Oe as instabilidades na magnetização começam a ocorrer. A curva H_2 , foi obtida reduzindo-se o campo

a partir de 700 Oe e observa-se que a magnetização é bem comportada não apresentando as instabilidades. No caso das curvas H_3 e H_4 , as medidas foram realizadas reduzindo-se o campo a partir de 2 kOe e 3 kOe, respectivamente. Nota-se que as instabilidades na magnetização ocorrem para uma variação de campo de aproximadamente 700 Oe para todas as curvas. Por esta razão, o campo de 700 Oe parece apresentar uma função de campo de desbloqueio acima do qual os momentos magnéticos passam a apresentar um comportamento instável.



(b)

Figura 5.17: (continuação). (b) Conjunto de curvas $M \times H$ para diferentes condições iniciais mostrando o caráter sistemático das instabilidades do momento magnético. Após uma variação de 700 Oe são observadas as instabilidades para todas as curvas.

5.2.4 Amostra NiNb-C

Até o momento foram discutidos os resultados do conjunto de amostras crescidas com a camada de Ni fixa, em 18,9 Å, e reduzindo-se a espessura da camada de Nb, desde 230 Å. Agora serão discutidos os aspectos principais do conjunto de amostras com a camada de Nb fixa, em 86,3 Å, e verificando as propriedades supercondutoras em função da espessura da camada de Ni. Sabe-se da literatura [3, 54] que o ferromagnetismo apresenta um comprimento de correlação, de modo que para amostras com espessuras da ordem deste comprimento, começam a mostrar efeitos de tamanho sobre o ferromagnetismo. A principal consequência deste efeito, é a redução da temperatura de Curie, de modo que para uma dada espessura crítica o material deixa de exibir ferromagnetismo. No caso das multicamadas de Ni/Nb, foi verificado que este comprimento se situa em torno de 14 Å [1]. Assim, para espessuras abaixo deste valor as camadas de Ni passam a exibir um caráter paramagnético. Este é o caso da amostra NiNb-C, na qual a camada de Ni apresenta uma espessura de 9,4 Å.

Uma vez que as características magnéticas são menos intensas na amostra NiNb-C, espera-se que as propriedades supercondutoras sejam dominantes. Isto de fato ocorre nas curvas $M \times T$ mostradas na figura 5.18, onde é verificada uma transição supercondutora abrupta em todos os campos aplicados, para ambas as orientações. Na figura 5.19a, é observado um comportamento semelhante ao caso da amostra NiNb-A (figura 5.5c) onde, acima de um determinado valor de campo aplicado, a magnetização da amostra passa a exibir uma curvatura positiva. Esta é uma evidência de que o magnetismo do Ni passa a contribuir de maneira significativa para campos acima de 3 kOe, onde a curva FCC atinge valores positivos quando a temperatura atinge 2 K. Isto não é observado na orientação paralela, conforme mostrado na figura 5.19b, onde a curva FCC apresenta uma redução monotônica com o decréscimo da temperatura.

Uma característica interessante da amostra NiNb-C é que sua temperatura crítica supercondutora, $T_c \approx 6,1$ K, apresenta um valor relativamente baixo, inferior ao apresentado pela amostra NiNb-A, onde $T_c \approx 6,9$ K. Isto mostra o grande efeito de redução de espessura da camada do Nb sobre as propriedades supercondutoras. Para a amostra NiNb-A as camadas de Ni são ferromagnéticas e o efeito sobre a quebra de pares é significativamente maior. Portanto, considerando apenas o efeito de proximidade, espera-se que na amostra NiNb-C, com camadas paramagnéticas de Ni, a supressão do estado supercondutor seja menor, fazendo com que T_c apresentasse um valor maior. Entretanto, acredita-se que a contribuição devido a redução de espessura das camadas de Nb domina a física que descreve o decréscimo observado de T_c .

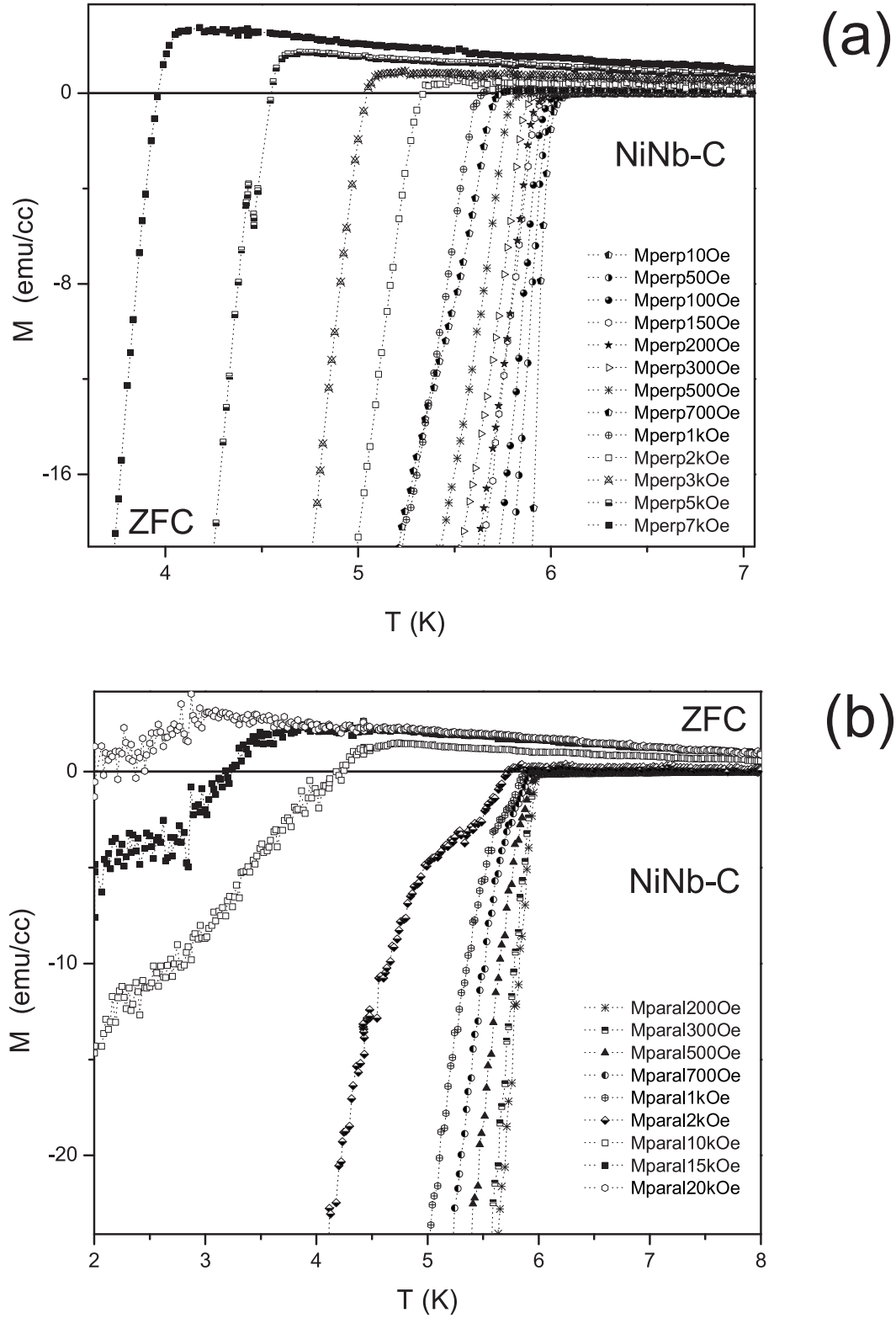


Figura 5.18: Curvas $M \times T$ para a amostra NiNb-C . As curvas mostram uma transição supercondutora bem definida tanto para a orientação perpendicular (a), quanto para a orientação paralela (b).

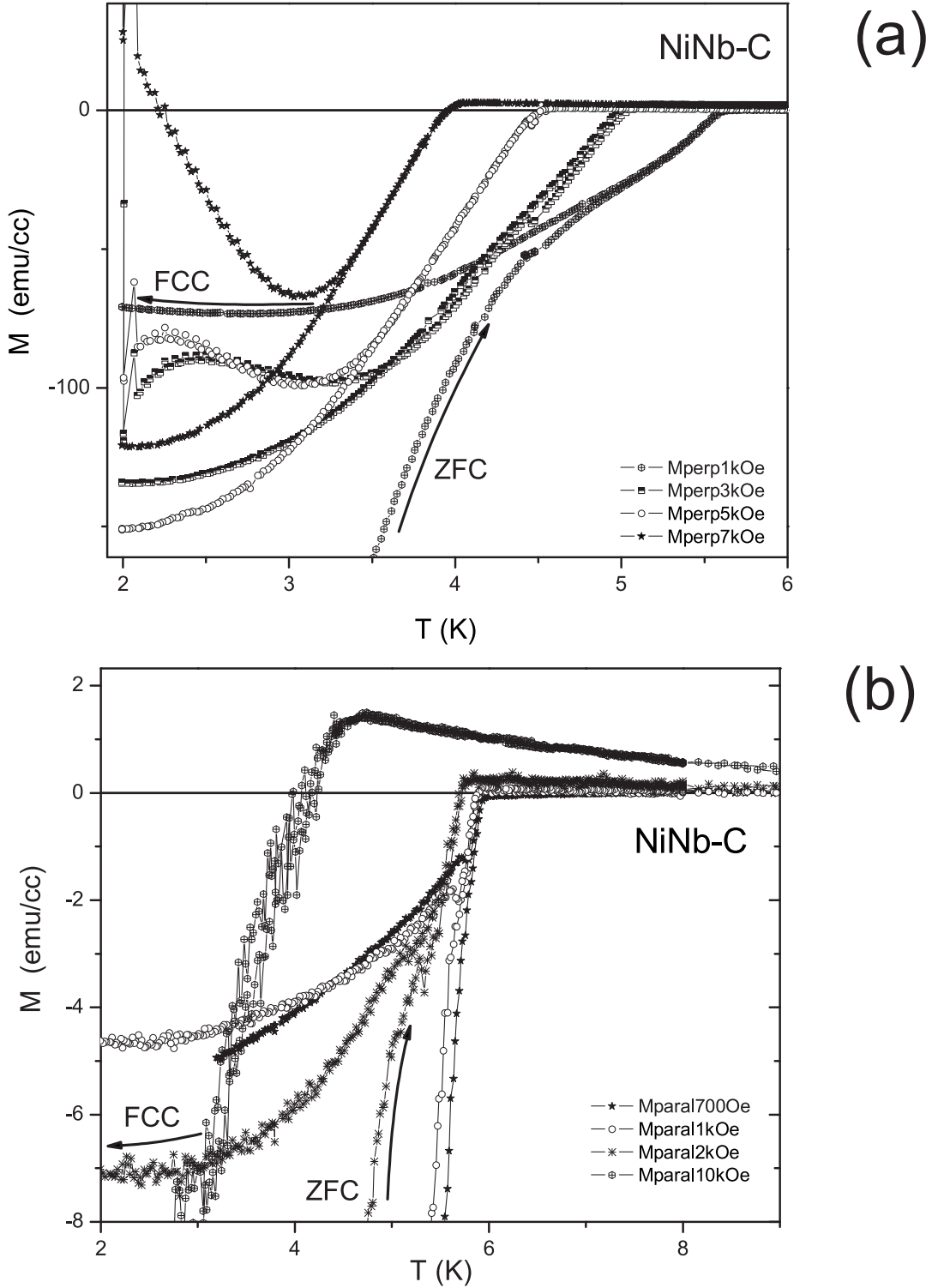


Figura 5.19: Curvas $M \times T$ para a amostra NiNb-C . (a) As curvas $M \times T$ para o intervalo de campos de 1 kOe a 7 kOe para a orientação paralela mostram que existe uma clara mudança na curvatura na curva FCC, da mesma forma que foi observada para a amostra NiNb-A (figura 5.5c). No caso de 7 kOe a magnetização assume valores positivos para T próximo de 2 K. (b) Na orientação paralela não ocorre a mudança na curvatura conforme mostrado nas curvas de 700 Oe a 10 kOe.

Com os dados da temperatura de transição supercondutora, obtidos com as curvas $M \times T$ da figura 5.18, foi construído o diagrama $H \times T$ apresentado na figura 5.20. O comportamento de $H_{c2\parallel}$ é linear com a temperatura. Assim, conclui-se que a amostra está no regime tridimensional para todo o intervalo de temperatura medido, o que é evidente pela boa concordância do ajuste da equação $H_{c2\parallel}(T) = 38870(1 - T/6)$ aos pontos experimentais. O campo crítico perpendicular também apresenta um comportamento linear conforme mostra a boa concordância com o ajuste $H_{c2\perp}(T) = 21590(1 - T/6,1)$. Isto é coerente, desde que as órbitas eletrônicas estão confinadas nas camadas de Nb conforme tem-se discutido ao longo das análises realizadas.

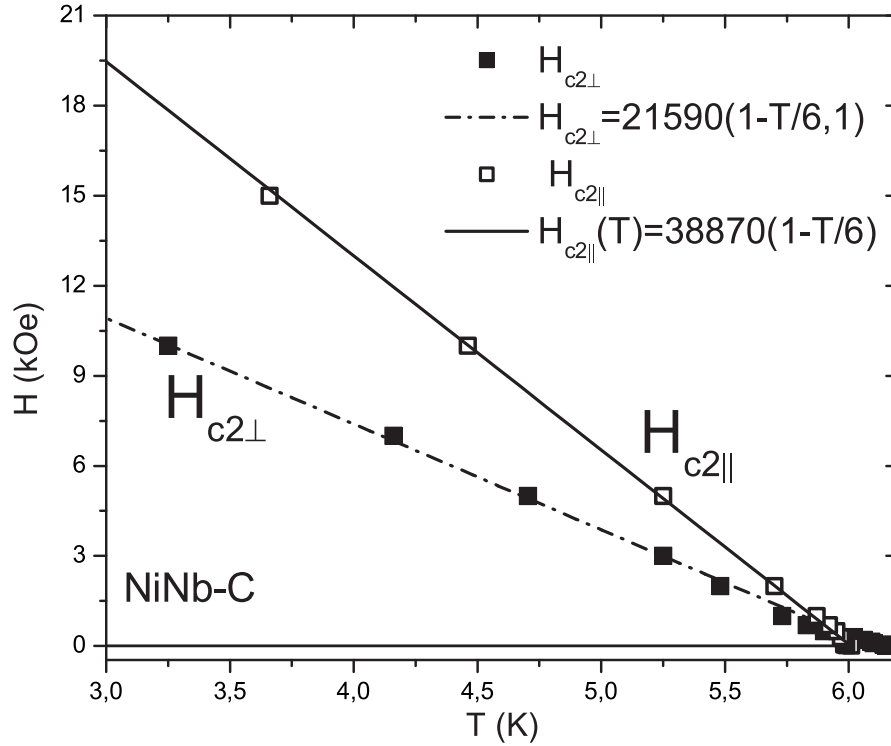


Figura 5.20: Diagrama $H \times T$ para a amostra NiNb-C. Para esta amostra não é observado uma transição dimensional como as amostras estudadas anteriormente.

A linearidade de $H_{c2\parallel}$ permite a aplicação direta das equações de GL, para determinar os parâmetros relevantes ao sistema. De acordo com as equações 2.25 e 2.26, é possível obter o comprimento de coerência perpendicular e paralelo aos planos em $T = 0$. Considerou-se os valores de $H_{c2\parallel}(4,77 \text{ K}) \approx 8 \text{ kOe}$ e $H_{c2\perp}(4,77 \text{ K}) \approx 4,7 \text{ kOe}$ (poderia ser usado qualquer valor de temperatura). Através da equação 2.25 do

capítulo 2,

$$H_{c2\perp} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}^2}$$

foi possível determinar o comprimento de coerência $\xi_{\parallel}(4,77 \text{ K}) \approx 266 \text{ \AA}$. Com a equação 2.28,

$$\xi(T) = \xi(0) \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{-\frac{1}{2}}$$

obteve-se o valor de $\xi_{\parallel}(0) \approx 124 \text{ \AA}$. Desde que o parâmetro de anisotropia pode ser determinado pela razão dos campos críticos, ou pela razão entre os comprimentos de coerência (equação 2.27),

$$\gamma = \frac{H_{c2\parallel}}{H_{c2\perp}} = \frac{\xi_{\parallel}}{\xi_{\perp}}$$

então do valor da razão $\frac{H_{c2\parallel}(4,77 \text{ K})}{H_{c2\perp}(4,77 \text{ K})}$, obtém-se que $\gamma \approx 1,7$. Logo, $\xi_{\perp}(0)$ pode ser obtido por $\xi_{\perp}(0) = \xi_{\parallel}(0)/\gamma \approx 73 \text{ \AA}$. A ausência de transição dimensional é consistente com a teoria, lembrando que para ocorrer a transição o comprimento de coerência deve ser dado por $\xi(T^*) = \Lambda/\sqrt{2} = 95,7/\sqrt{2} \approx 67,7 \text{ \AA}$. O valor de Λ é dado na tabela 5.1, página 53. Entretanto este valor é menor do que o comprimento de coerência perpendicular a zero kelvin, $\xi_0 \approx 73 \text{ \AA}$. Isto significa que é impossível obter uma transição dimensional do tipo observada nas amostras NiNb-A e NiNb-B neste sistema. Portanto, os dados da figura 5.20 são consistentes com o esperado teoricamente para a amostra NiNb-C.

Embora seja estabelecido que a supercondutividade nesta amostra esteja em um regime tridimensional, existe claramente uma anisotropia, dada pelo fator $\gamma = 1,7$. Isto significa que existe uma dependência de H_{c2} com o ângulo entre o campo e o plano das camadas. A origem para a anisotropia de H_{c2} , pode ser entendida considerando o modelo de GL descrito no capítulo 2, onde é considerado que o elétron apresenta massas efetivas diferentes, de acordo com sua orientação em relação aos eixos a , b e c , da amostra. Deste modo, a massa é representada por um tensor com as componentes diagonais, m_a , m_b e m_c , para cada um dos eixos correspondentes. Considerando que a anisotropia no plano seja muito pequena então $m_a \approx m_b = m_{ab}$, de modo que a massa efetiva é diferente apenas ao longo do eixo c , perpendicular às camadas. Lembrando que o fator de anisotropia é dado pela equação 2.27, então um fator $\gamma = 1,7$, implica que $m_c \approx 3m_{ab}$. Portanto, é mais difícil transportar elétrons perpendicularmente às camadas de Ni e Nb. Isto ocorre porque as correntes atravessam as camadas através do tunelamento Josephson, e assim são menores do que as correntes ao longo do plano, confinadas no material puramente supercondutor. Quando se considera estes fatos no contexto da dinâmica de vórtices uma consequência importante é que os campos críticos são diferentes, dependendo da direção. Considerando que o campo seja aplicado na direção paralela, então as correntes de blindagem irão circular em torno dos vórtices, tunelando entre as camadas. Portanto,

nesta direção as correntes são menores, e o aumento da energia total devido à energia cinética não é tão grande comparado ao caso do campo aplicado perpendicularmente, onde as correntes de blindagem estão confinadas nas camadas de Nb. Assim, é possível aplicar campos mais intensos na direção paralela às camadas sem destruir o estado supercondutor.

Nas figuras 5.21(a-d), são apresentadas as curvas $M \times H$ para ambas as orientações do campo aplicado. Nas figuras 5.21a,b são apresentados as curvas para $T = 10$ K, onde é detalhada a região próxima de $H = 0$. Vê-se que a curva é reversível, apresentando flutuações na magnetização. Isso ocorre para ambas as orientações. Para $T = 2$ K o estado supercondutor é dominante conforme mostram os gráficos da figura 5.21(d) e (c). A explicação para a ausência do ferromagnetismo pode ser feita considerando a espessura das camadas de Ni. Para espessuras abaixo de $14 \text{ \AA}$, a interdifusão nas interfaces faz com que uma fração relevante de átomos de Ni sejam diluídos entre os átomos de Nb. Como resultado, a distância entre os átomos de Ni se torna grande o suficiente para extinguir a interação de troca entre os elétrons, e deste modo, as camadas passam a exibir um comportamento paramagnético [66].

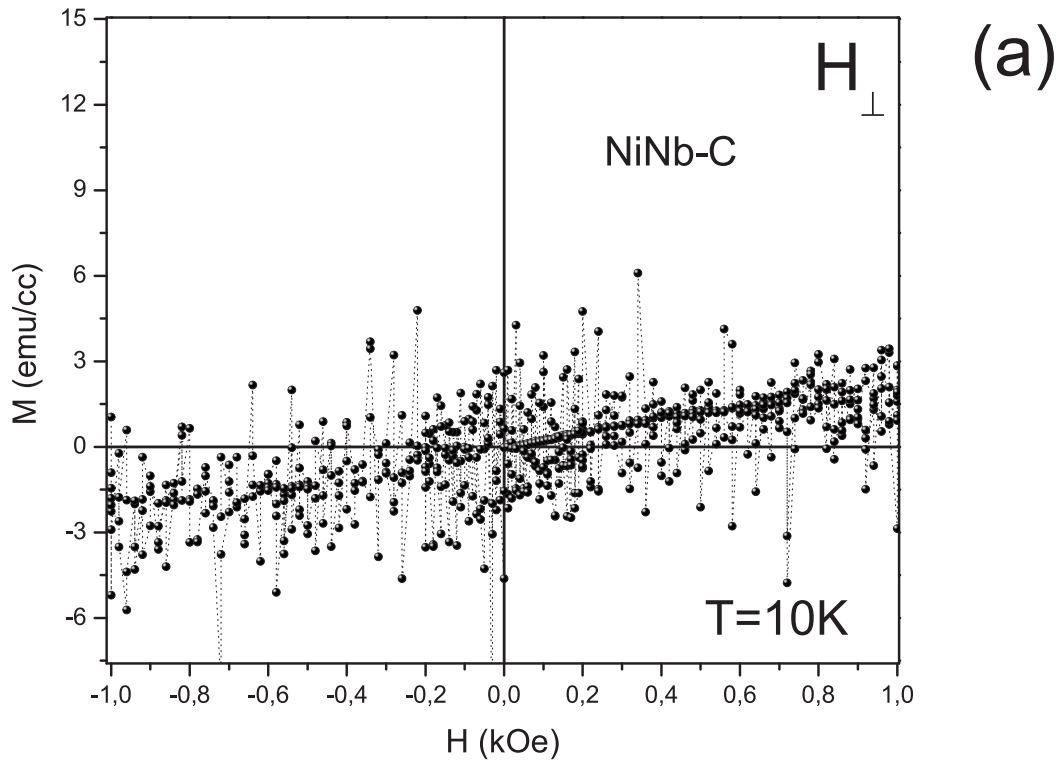


Figura 5.21: Curvas $M \times H$ para a amostra NiNb-C . (a) Campo aplicado perpendicularmente as camadas para $T = 10$ K. A reversibilidade da curva indica que possivelmente a amostra NiNb-C apresenta um comportamento paramagnético.

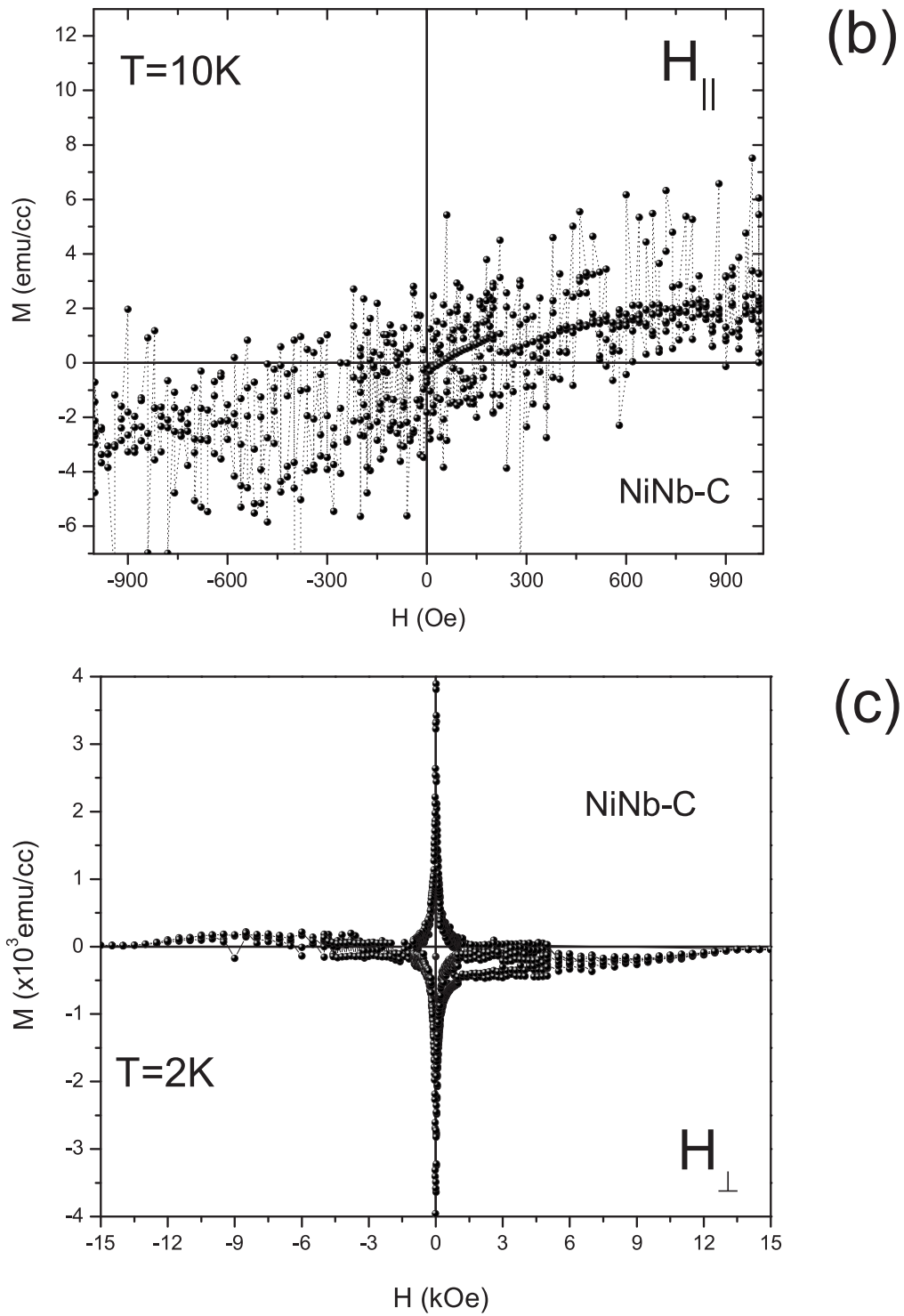


Figura 5.21: (continuação). (b) Campo aplicado paralelamente as camadas para $T = 10\text{ K}$. Como no caso perpendicular, aqui a curva é reversível indicando um possível comportamento paramagnético. (c) Campo aplicado perpendicularmente para $T = 2\text{ K}$. onde o sinal é predominantemente supercondutor.

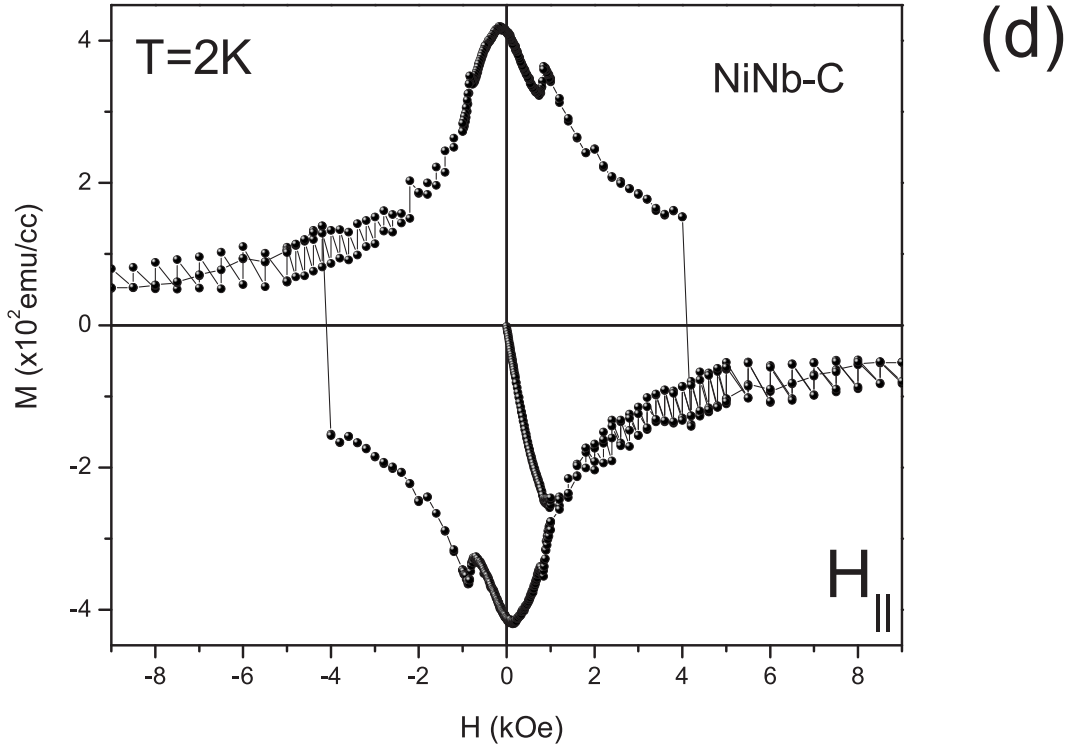


Figura 5.21: (continuação). (d) Curva $M \times H$ para uma orientação paralela em $T = 2$ K. Novamente o sinal é predominantemente supercondutor. Em ambas as orientações para $T = 2$ K, as medidas não foram realizadas até campos suficientemente altos para levar a amostra para o estado normal.

5.2.5 Amostra NiNb-D

A seguir serão apresentados os resultados para a amostra NiNb-D, composta de 19 bicamadas de Ni-Nb com espessuras de 4 Å e 86,3 Å, respectivamente. Conforme será mostrado adiante, ocorreram algumas mudanças significativas nas propriedades supercondutoras em relação à amostra NiNb-C, onde as camadas de Ni tiveram espessura de 9,4 Å, sendo esta a única diferença entre as duas amostras.

Nas figuras 5.22 e 5.23 são apresentadas as curvas $M \times T$ para campos aplicados paralela e perpendicularmente às camadas. No caso do campo aplicado na orientação perpendicular (figura 5.22a), as curvas apresentam um comportamento parecido com o da amostra NiNb-C, com transições abruptas em campos até 5 kOe. Mas para campos acima deste valor, os efeitos magnéticos podem ser perceptíveis através de uma leve curvatura para cima das curvas ZFC. Na figura 5.22b são mostradas algumas curvas no regime ZFC-FCC onde nota-se o efeito observado nas amostras anteriores, onde acima de um certo campo a curva FCC exhibe um padrão quase parabólico.

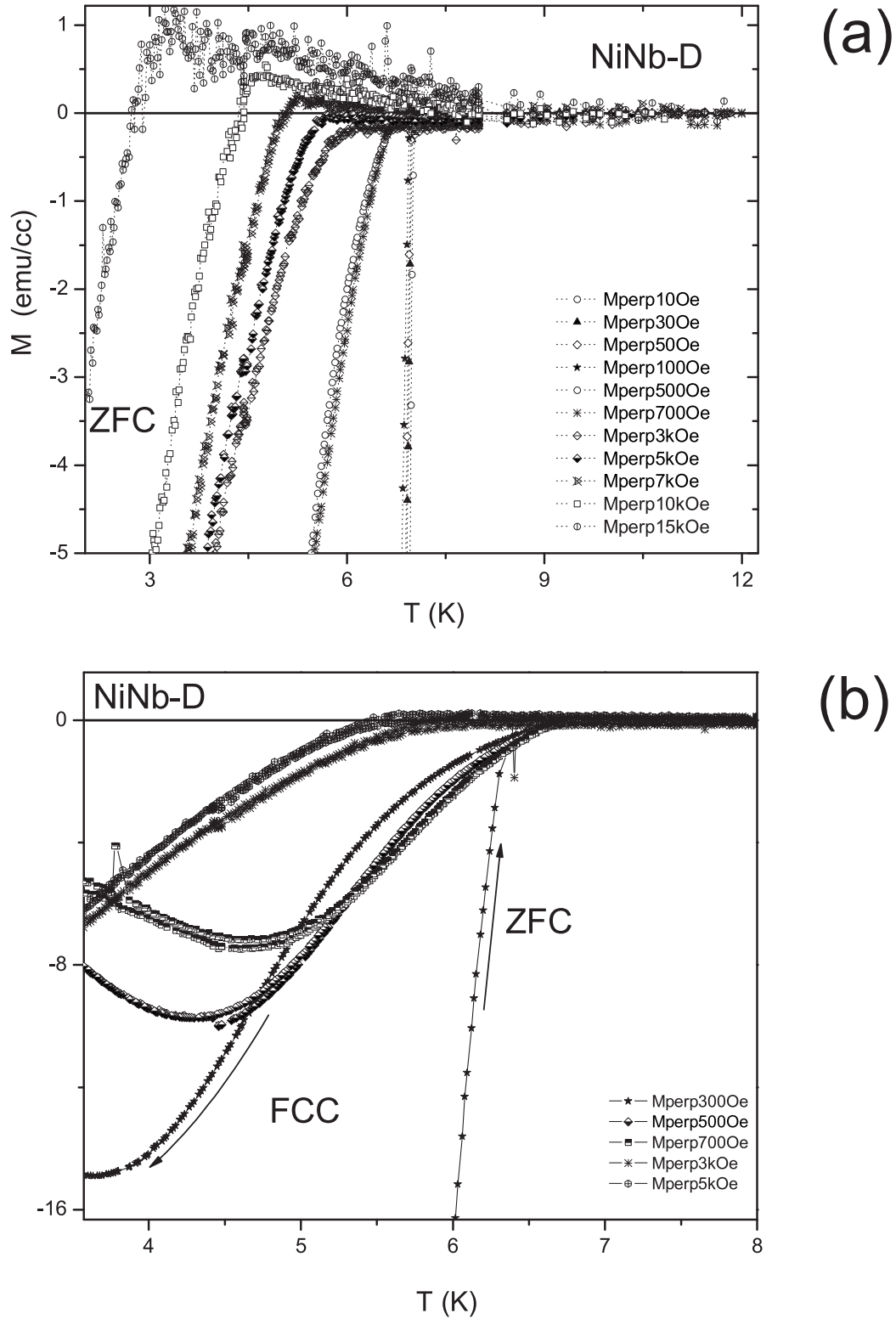


Figura 5.22: Curvas $M \times T$ para a amostra NiNb-D na orientação perpendicular. (a) As curvas para $H_{\perp}$ mostram uma transição abrupta. (b) No processo FCC é mostrada a tendência da magnetização em assumir uma variação semelhante a uma parábola como observado no caso das amostras NiNb-A e NiNb-C.

A figura 5.23a mostra as curvas $M \times T$ para o caso paralelo onde é verificada algumas diferenças no comportamento supercondutor comparado com a amostra NiNb-C. Para campos até cerca de 100 Oe a transição é típica de um sistema supercondutor, mas para campos acima deste valor fica evidente a existência de uma segunda transição muito parecida com o caso perpendicular da amostra NiNb-A (figura 5.6a), onde a segunda transição foi atribuída a um possível desacoplamento dos vórtices. Na figura 5.23b, é mostrado algumas curvas no processo ZFC-FCC, e fica evidente que na orientação paralela não ocorre o aumento parabólico na magnetização como no caso perpendicular. Além disso, para valores acima de 5 kOe, as curvas são totalmente reversíveis.

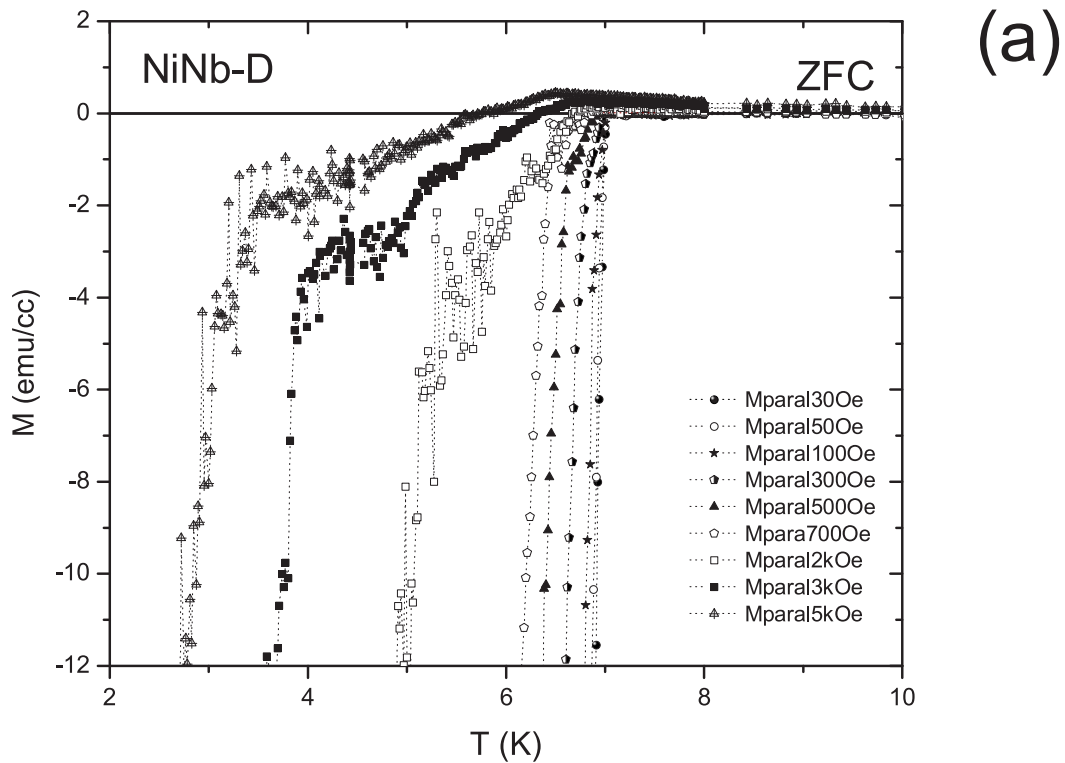


Figura 5.23: Curvas $M \times T$ para a amostra NiNb-D na orientação paralela. (a) As curvas indicam claramente a existência de uma segunda transição.

A redução da espessura da camada de Ni apresentou um efeito significativo sobre a temperatura crítica, $T_c \approx 7,0$ K. Isto mostra que mesmo no regime paramagnético as camadas de Ni apresentam efeitos importantes sobre a supercondutividade, dentro do conjunto de amostras com a camada de Nb fixa em 86,3 Å.

Na figura 5.24 são apresentadas algumas curvas $M \times T$ do caso paralelo, onde fica mais evidente a segunda

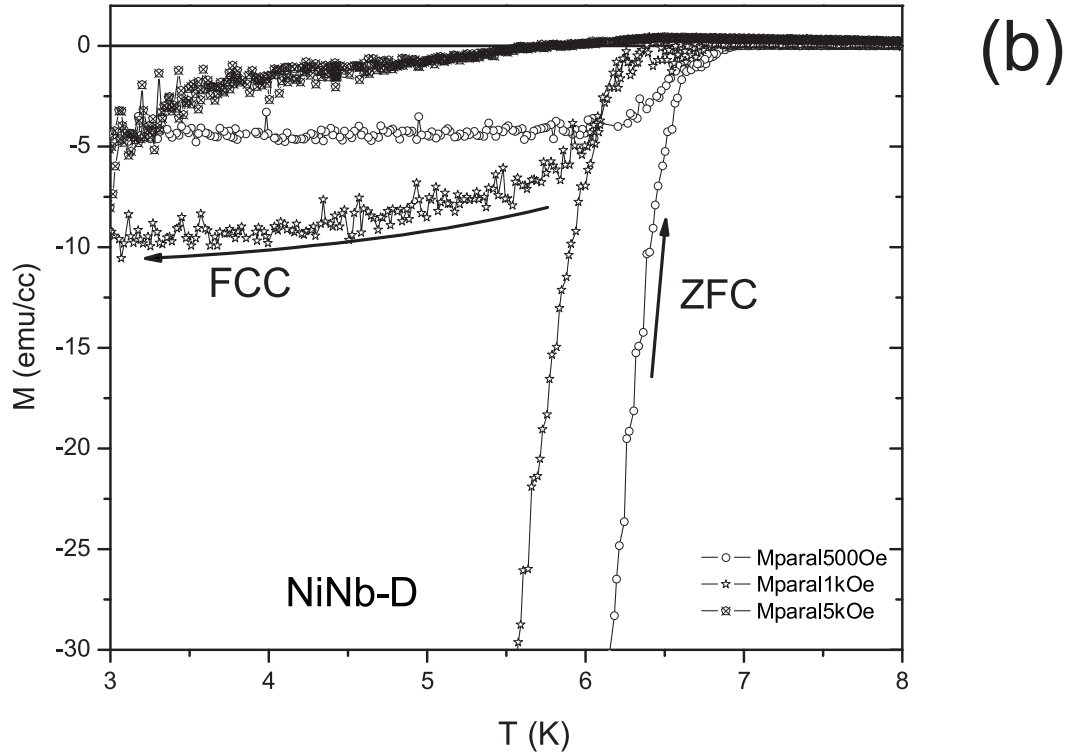


Figura 5.23: (*continuação*). Curvas MxT para a amostra NiNb-D na orientação paralela. (b) Curva para o caso paralelo, onde são mostradas algumas curvas e observa-se que nesta orientação não ocorre a tendência observada no processo FCC do caso perpendicular.

transição (denotada por T_α). No detalhe é mostrada uma visão ampliada das curvas de 100 a 500 Oe, onde fica muito clara a existência da segunda transição neste intervalo de campos. É importante considerar aqui que a origem deste fenômeno deve ser distinta do que foi observado na figura 5.6a, para a amostra NiNb-A. Naquele caso, a proposta de uma linha de desacoplamento está ligada à existência da transição dimensional do acoplamento supercondutor, através das camadas de Ni. Além disso, a transição de desacoplamento ocorre na direção perpendicular, o que é coerente com a hipótese de transição de uma rede de linhas de vórtices tridimensional para um sistema de panquecas de vórtices. Entretanto no caso da amostra NiNb-D, a dupla transição ocorre na direção paralela, o que exclui a possibilidade de desacoplamento de vórtices. Isto porque sempre existe um caminho contínuo ao longo da amostra para a linha de fluxo. Além disso, o estado supercondutor está num regime tridimensional, conforme será discutido a seguir. Assim, a interpretação em termos de transição dimensional não pode ser aplicada neste caso. Neste trabalho não foi possível fazer um estudo sistemático a respeito das transições duplas observadas. Suspeita-se que este fenômeno possa

estar associado com um aprisionamento mais forte dos vórtices, em situações de comensurabilidade entre o espaçamento dos vórtices ($a \approx \sqrt{\Phi_0/B}$) e a distância de modulação (Λ) das multicamadas.

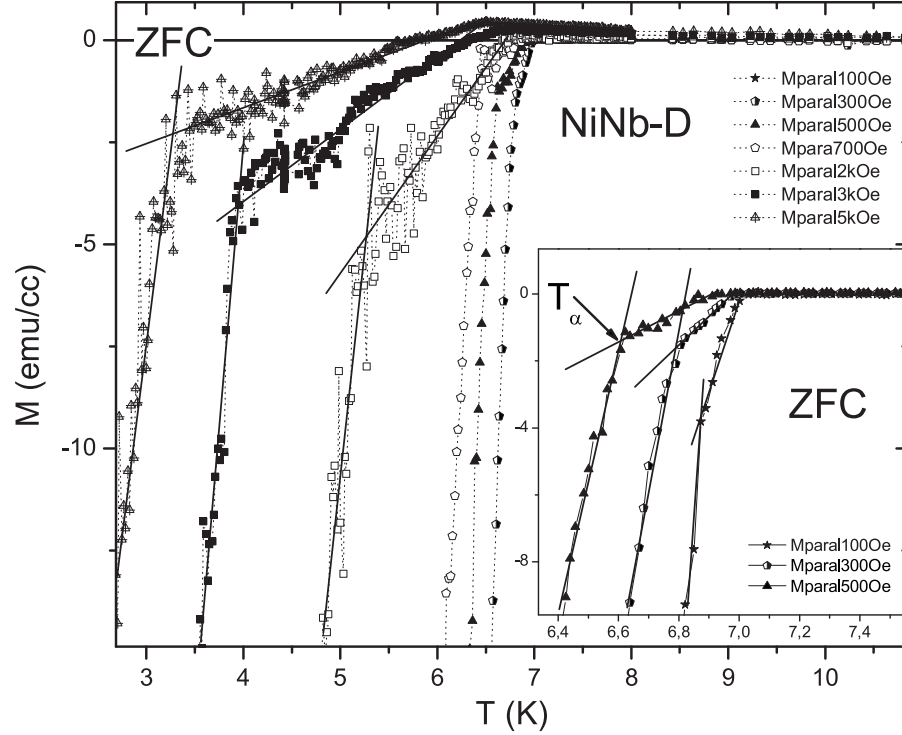


Figura 5.24: Curvas $M \times T$ para a amostra NiNb-D onde fica mais notável a segunda transição. As retas auxiliares evidenciam o comportamento das curvas. Também é mostrado no detalhe uma visão ampliada das curvas de 100 a 500 Oe.

Na figura 5.25, são mostradas várias linhas $H \times T$ para a amostra NiNb-D. A linha $H_\alpha(T)$ referente à segunda transição exibe uma curvatura negativa para todo o intervalo de temperaturas, existindo apenas um ponto que indica uma possível mudança de comportamento. Na mesma figura, também são mostradas as curvas $H_{c2\parallel}(T)$ e $H_{c2\perp}(T)$. Estas exibem um comportamento linear, e portanto, o acoplamento supercondutor é tridimensional. Desta forma, é possível aplicar a mesma análise realizada na amostra NiNb-C, usando as equações de GL discutidas no capítulo 2.

Considerou-se os valores de $H_{c2\parallel}(6,18 \text{ K}) \approx 6,94 \text{ kOe}$ e $H_{c2\perp}(6,18 \text{ K}) \approx 3,1 \text{ kOe}$ (poderia ser usado qualquer valor de temperatura). Através da equação 2.25 do capítulo 2,

$$H_{c2\perp} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}^2}$$

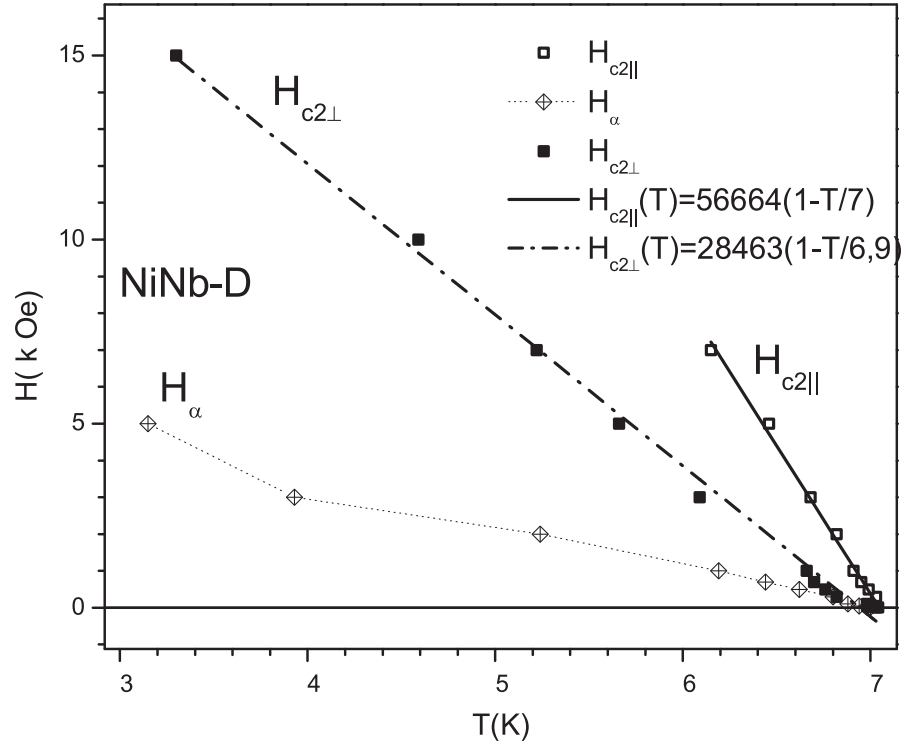


Figura 5.25: Diagrama $H \times T$ para a amostra NiNb-D para campos paralelo e perpendicular as camadas. O diagrama H_{α} corresponde aos valores de temperatura onde ocorre a segunda transição, conforme mostrado na figura 5.24.

foi possível determinar o comprimento de coerência $\xi_{\parallel}(6,18 \text{ K}) \approx 326 \text{ \AA}$. Com a equação 2.28,

$$\xi(T) = \xi(0) \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{-\frac{1}{2}}$$

obteve-se o valor de $\xi_{\parallel}(0) \approx 117 \text{ \AA}$. Desde que o parâmetro de anisotropia pode ser determinado pela razão dos campos críticos, ou pela razão entre os comprimentos de coerência (equação 2.27),

$$\gamma = \frac{H_{c2\parallel}}{H_{c2\perp}} = \frac{\xi_{\parallel}}{\xi_{\perp}}$$

então do valor da razão $\frac{H_{c2\parallel}(6,18 \text{ K})}{H_{c2\perp}(6,18 \text{ K})}$, obtém-se que $\gamma \approx 2,2$. Logo, $\xi_{\perp}(0)$ pode ser obtido por $\xi_{\perp}(0) = \xi_{\parallel}(0)/\gamma \approx 53 \text{ \AA}$. O comprimento de coerência abaixo do qual o sistema apresenta comportamento bidimensional é dado por $\xi(T^*) = \Lambda/\sqrt{2} = 90,3/\sqrt{2} \approx 63,9 \text{ \AA}$, o valor de Λ é dado na tabela 5.1, página 53. Desde que $\xi(T^*) > \xi(0)$, então a transição dimensional é possível nesta amostra. Para determinar o valor da temperatura T^* onde ocorre a transição basta substituir o valor $\Lambda/\sqrt{2} = 63,9 \text{ \AA}$ na equação 2.28 que determina a variação do comprimento de coerência com a temperatura. Isto resulta em $T^* = 2,2 \text{ K}$. Isto

mostra que a transição dimensional ocorre no extremo inferior do intervalo de temperatura medido pelo magnetômetro SQUID o que é consistente com o comportamento linear apresentado pela curva $H_{c2||}(T)$. Este resultado já era esperado tendo em vista que a espessura da camada de Ni na amostra NiNb-D é menor do que a da amostra NiNb-C .

Na figura 5.26 são apresentadas as curvas $M \times H$ para a amostra NiNb-D . Para $T = 10$ K fica evidente o comportamento paramagnético apresentado pela amostra. Isso é consistente desde que a mesma apresenta uma camada de Ni de apenas 4 Å, significando que os efeitos de interdifusão atômica nas interfaces pode ter suprimido as interações de troca. No caso da orientação paralela figura 5.26b, é bem claro a mudança de sinal da magnetização média em torno de $M = 0$. Nas figuras 5.26c e 5.26d são mostradas as curvas para $T = 2$ K, onde é verificado uma histerese típica de um material supercondutor, desde que este domina o sinal magnético da amostra. É importante observar aqui, que nestas medidas, o intervalo de campo aplicado foi insuficiente para levar a amostra ao estado normal como fica bem evidente para o caso perpendicular mostrado na figura 5.26c.

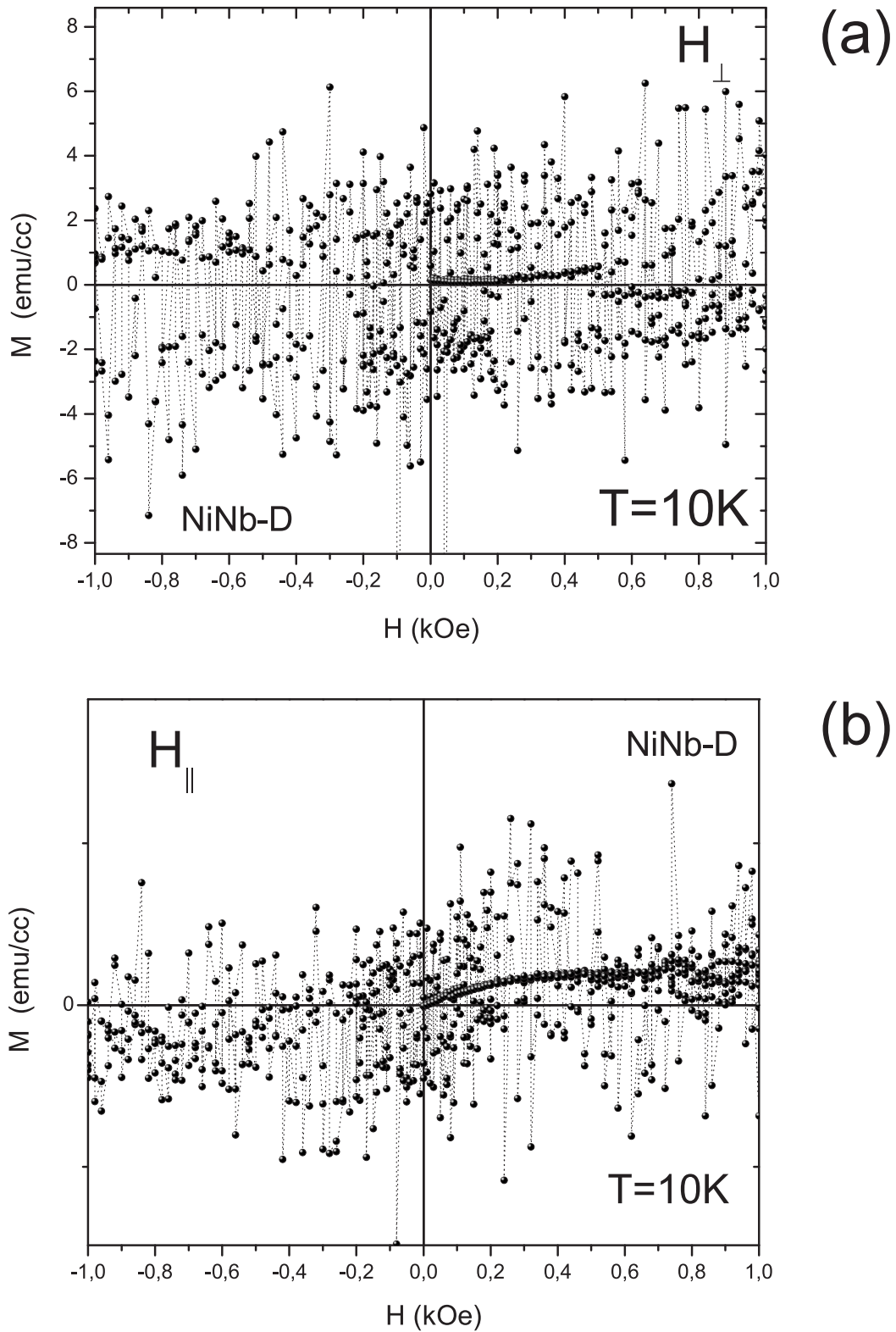


Figura 5.26: Curvas $M \times H$ para $T = 10$ K para a amostra NiNb-D, em ambas as orientações. É mostrada a região em torno de $H = 0$. (a) Curva para a orientação perpendicular. (b) Curva para a orientação paralela. O caráter reversível das curvas indica que a amostra possivelmente apresenta um caráter paramagnético.

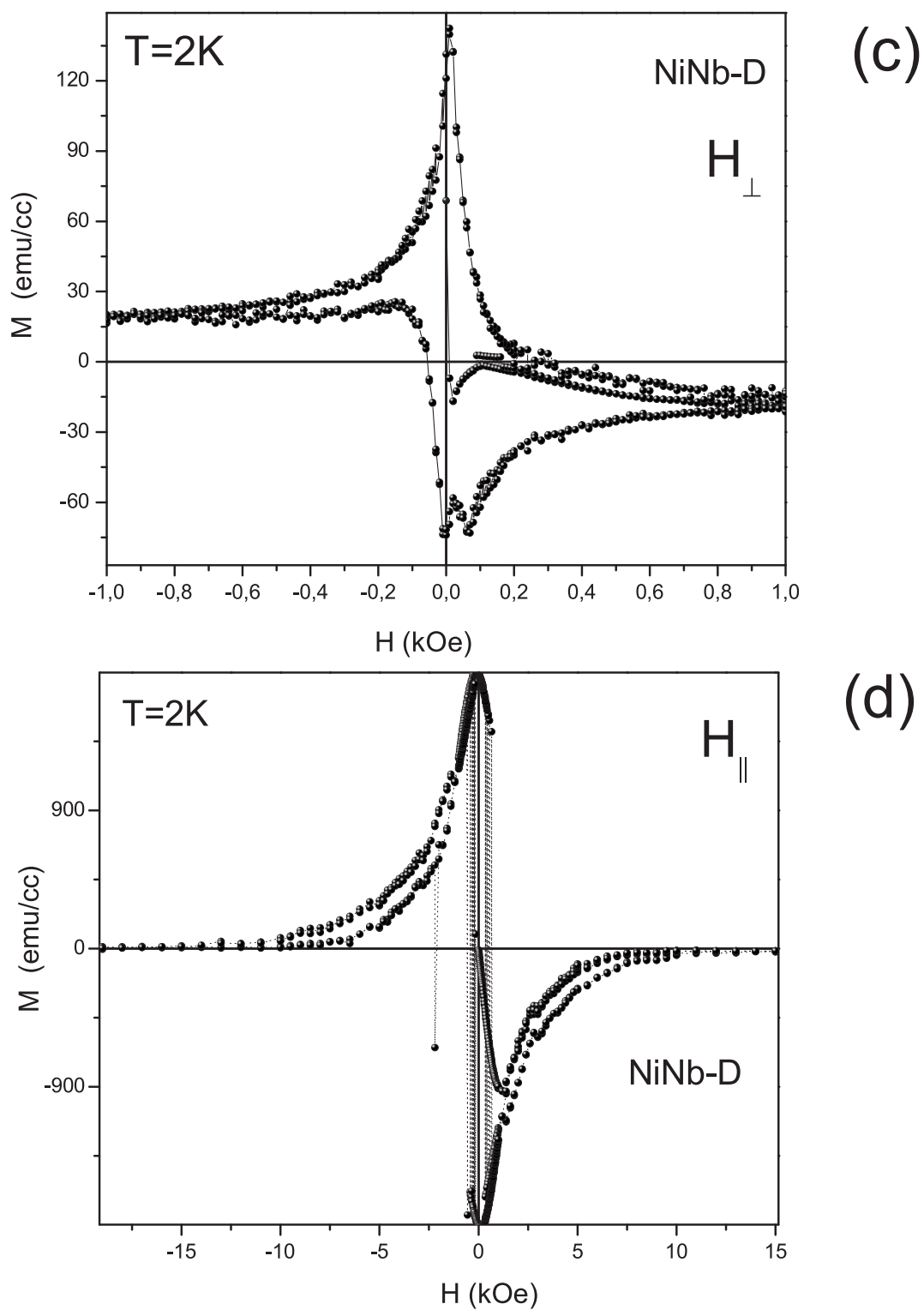


Figura 5.26: (continuação). Curvas $M \times H$ para $T = 2$ K para a amostra NiNb-D, em ambas as orientações. (c) Curva para a orientação perpendicular. (d) Curva para orientação paralela. Nas duas curvas o intervalo de campo aplicado não foi suficiente para levar a amostra ao estado normal.

Conclusão

Os estudos em sistemas multicamadas de Nb/Ni têm sido realizados principalmente com o objetivo de verificar as oscilações da temperatura crítica, com a variação da espessura da camada ferromagnética [11]. Em outros trabalhos foram realizadas medidas de campo crítico superior e estas apenas revelaram um comportamento tridimensional do acoplamento supercondutor, para as amostras estudadas [67, 68]. Paralelamente, foram realizados estudos sobre o acoplamento magnético das camadas de Ni, concluindo-se que este requereria camadas muito estreitas de Nb, nas quais a supercondutividade estaria completamente suprimida [1]. Assim não foi possível observar o acoplamento magnético entre as camadas de Ni, intercaladas com camadas supercondutoras de Nb. Em outro trabalho, medidas de magnetização revelaram instabilidades da resposta magnética dos sistemas multicamadas, atribuindo-se este efeito à interação entre o estado supercondutor das camadas de Nb e o magnetismo das camadas de Ni [69, 70].

Neste trabalho de tese, os sistemas multicamadas de Ni/Nb, crescidos por *magnetron sputtering*, foram caracterizados por meio de difração de raios X, em baixo e alto ângulo, e através de medidas de magnetização, em função da temperatura e do campo magnético. As medidas de raios X revelaram um caráter lamelar do sistema multicamadas com a presença de rugosidade nas interfaces. As medidas de magnetização também revelaram instabilidades no momento magnético, como reportado na literatura. Além disso, pela primeira vez foram verificados diferentes regimes de dimensionalidade do acoplamento supercondutor neste sistema [56].

Entre as quatro amostras estudadas, os dados obtidos para NiNb-A e NiNb-B revelaram uma transição dimensional 3D-2D do acoplamento supercondutor, o que conferiu um brusco aumento na linha $H_{c2||}(T)$. Isto foi verificado em outros sistemas supercondutores [32, 33] e é atribuído à supressão dos efeitos orbitais quando os vórtices ajustam-se entre as camadas supercondutoras [31]. A transição dimensional apresenta efeitos diretos sobre a matéria de vórtices, permitindo a conjectura de que a transição dupla observada na

amostra NiNb-A (figura 5.6) possa estar relacionada com a transição de um sistema de vórtices 3D para um sistema 2D de panquecas de vórtices, confinadas nas camadas de Nb. A razão para sustentar esta hipótese é o fato da linha de desacoplamento começar em uma temperatura em torno de $T^* \approx 5,42$ K, a temperatura de transição dimensional. Outro fator importante é o cruzamento desta linha com a linha de irreversibilidade $H_{irr}(T)$, também em torno de T^* , mostrando que nesta região pode haver uma mudança importante na dinâmica dos vórtices. Isto indica que a linha de irreversibilidade pode estar associada com um *depinning* ou fusão de um sistema 3D de linhas de vórtices, para $T > T^*$, ou de um sistema de panquecas de vórtices, para $T < T^*$. A transição observada em baixos campos na orientação paralela, ainda para amostra NiNb-A (figura 5.10), também pode ser relacionada com transição dimensional, dado que os pontos correspondentes a esta transição estão situados na extrapolação do ajuste dos pontos de $H_{c2||}(T)$. O ajuste com o modelo de Lawrence-Doniach permitiu verificar de maneira quantitativa a transição dimensional da amostra NiNb-A, e pode-se também concluir que as flutuações térmicas sejam relevantes neste sistema. Estes efeitos podem ter uma relação próxima com o *depinning* ou fusão da rede de vórtices, descrito pela linha $H_{irr}(T)$.

As amostras NiNb-C e NiNb-D apresentaram um comportamento puramente tridimensional no intervalo de temperatura medido, consistente com a teoria de Ginzburg-Landau, conforme foi mostrado nas figuras 5.20 e 5.25. Isto mostra que as camadas de Ni são muito estreitas para desacoplar as camadas supercondutoras de Nb. Além disso, ambas as amostras exibiram um comportamento paramagnético verificado pela reversibilidade das curvas $M \times H$, para $T = 10$ K (figuras 5.26a,b e 5.21a,b.). Uma hipótese para este comportamento seria a diluição dos momentos magnéticos do Ni, devido à interdifusão atômica dos átomos Ni e Nb nas interfaces entre as camadas. Esta possibilidade é sustentada pelas medidas de difração de raios X em baixo ângulo que mostram um caráter aperiódico, revelando uma alta rugosidade nas interfaces para estas amostras. Uma característica peculiar, observada na amostra NiNb-D, é a dupla transição nas curvas $M \times T$ para a orientação paralela ao campo (figura 5.23). Esta transição não pode ser relacionada com o desacoplamento de vórtices e uma explicação para este comportamento requereria uma investigação mais aprofundada. Uma hipótese para explicar este efeito seria atribuí-lo a um processo de *pinning* mais efetivo, quando a rede de vórtices apresentasse um espaçamento comensurável com a distância de modulação das camadas.

As instabilidades no momento magnético foram notadas em todas as curvas $M \times H$, para todas as amostras, principalmente em $T = 10$ K. Isto está em acordo com resultados verificados na literatura [69, 70]. Além disso, as medidas na amostra NiNb-B, mostraram que existe um caráter sistemático nas instabilidades observadas. As descontinuidades nas curvas $M \times H$, para $T = 2$ K, mostram que possivelmente

exista uma competição e/ou interação muito forte entre as respostas supercondutora e magnética das camadas de Nb e Ni, respectivamente. Como resultado, ocorrem distorções nas linhas de força da amostra, não permitindo que a aproximação de dipolo pontual, usada no algoritmo do magnetômetro SQUID, seja bem aplicado para determinar o momento magnético da amostra. As origens destas instabilidades requerem mais investigação.

Os resultados acima indicam que existem três fatores importantes que exercem uma forte influência sobre as propriedades supercondutoras das camadas de Nb: o magnetismo das camadas de Ni, os efeitos de tamanho finito de ambas as camadas, e o caráter periódico do sistema multicamadas que pode conferir um *pinning* mais efetivo sobre a rede de vórtices. A separação de cada um destes fatores é difícil de ser realizada, usando apenas medidas de magnetização. Por esta razão, não foi possível fazer uma análise mais completa dos dados, embora estes tenham revelado forte evidência dos efeitos de transições dimensionais do acoplamento supercondutor sobre a matéria de vórtices. Dada à forte interação de uma corrente elétrica com a rede de vórtices, medidas de resistividade seriam muito importantes em um trabalho futuro, com o objetivo de corroborar as hipóteses levantadas neste trabalho. Além disso, a interdifusão atômica nas interfaces entre as camadas pode dar origem a uma camada intermediária. Para determinar com precisão a natureza desta camada, seria necessário fazer uma análise detalhada através de medidas de raios X em baixo ângulo.

Referências Bibliográficas

- [1] Mattson, J. E., Osgood, R. M., Potter, C. D., Sowers, C. H. e Bader, S. D. *Properties of Ni/Nb Superconducting Multilayers*, J.Vac. Sci.Technol., 15 (1997) 1774.
- [2] Izyumov, Y. A., Proshin, Y. N., Khusainov, M. G., *Competition between superconductivity and magnetism in ferromagnet/superconductor heterostructures*, Physics-Uspekhi, 45 (2002) 109.
- [3] Chien, C. L., and Reich, D. H., *Proximity effects in superconducting/magnetic multilayers*, J. Magn. Magn. Mater., 200 (1999) 83.
- [4] Jin, B. Y., Ketterson, J. B., *Artificial Metallic Superlattices*, Adv. Phys., 38 (1989) 189.
- [5] Garifullin, I. A., *Proximity Effects in ferromagnet/superconductor heterostructures*, J. Magn. Magn. Mater., 240 (2002) 571.
- [6] Chien, C. L., Jiang, J. S., Xiao, J. Q., Davidovic, D., Reich, D., *Proximity and coupling effects in superconducting/ferromagnet multilayers*, J. Appl. Phys., 81 (1997) 5358.
- [7] Löhneysen, H. v., Beckmann, D., Willard-Pérez, F., Schöck, M., Strunk, C., *Proximity effect between superconductors and ferromagnets: from thin films to nanostructures.*, Ann. Phys. (Leipzig), 14 (2005) 591.
- [8] Koorevaar, P., Suzuki, Y., Coehoorn, R., Aarts, J., *Decoupling of superconducting V by ultrathin Fe layers in V/Fe multilayers*, Phys. Rev. B, 49 (1994) 441.
- [9] Verbanck, G., Pottter, C.D., Metluskov, V., Schad, R., Moshchalkov, V. V., Bruynseraede, Y., *Coupling phenomena in superconducting Nb/Fe multilayers*, Phys. Rev. B, 57 (1998) 6029.
- [10] Strunk C., Sürgers C., Paschen, U., Löhneysen, H. v., *Superconductivity in layered Nb/Gd films*, Phys. Rev. B, 49 (1994) 4053.

- [11] Sidorenko, A. S., Zdravkov, V. I., Prepelitsa, A. A., Helbig, C., Luo, Y., Gsell, S., Schreck, M., Klim, S., Horn, S., Tagirov, L. R., Tidecks, R., *Oscillations of the Critical Temperature in Superconducting Nb/Ni Bilayers.*, Ann. Phys., 12 (2003) 37.
- [12] Tinkham, M., *Introduction to Superconductivity*, Ed. McGrawHill, New York (1996).
- [13] Obi, Y., Ikebe, M., Wakou H., Fujimori, H., J. Phy. Soc. Jpn., *Superconducting Transition Temperature and Dimensional Crossover in Nb/Co and V/Co Multilayers*, 68 (1999) 2750.
- [14] Wen, H. H., Yang, Y. L., Zhao, Z. X., Ni, Y. M., *Josephson-Coupling Origin for the Upward Curvature of the Pseudo-Upper-Critical Field in $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ crystals*, Phys. Rev. Lett., 82 (1990) 410.
- [15] de Lima, O. F., Awana, V. P. S., Ribeiro, R. A., Avila, M. A., *Josephson Coupling between superconducting clusters in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$* , Europhys. Lett., 51 (2000) 174.
- [16] Glazmann, L. I., Koshelev, A. E., *Thermal Fluctuations and Phase-Transitions in the Vortex State of a Layered Superconductor*, Phys. Rev. B, 43 (1991) 2835.
- [17] Onnes, H. K., *The resistance of pure mercury at helium temperatures*, Comm. Leiden., (1911) 120b.
- [18] Onnes, H. K., *The disappearance of the resistivity of mercury*, Comm. Leiden., (1911) 122b.
- [19] Onnes, H. K., *On the sudden change in the rate at which the resistance of mercury disappears*, Comm. Leiden., (1911) 124c.
- [20] Meissner, W., Ochsenfeld, R., *Naturwissenschaften*, 21 (1933) 787.
- [21] Ginzburg, V. L., Landau, L. D., *Zh. Eksperim. i. Teor. Fiz.*, 20 (1950) 1064.
- [22] Bardeen, J., Cooper, L. N., Schrieffer, J. R., *Theory of Superconductivity*, Phys. Rev., 108 (1957) 1175.
- [23] Bednorz, J. G., Müller, K. A., *Possible high- T_c in La-Ba-Cu-O system*, Zeitschrift für Physik B - Condensed Matter 64 (1986) 189.
- [24] Pippard, A. B., *Classical Thermodynamics*, ed. Cambridge University Press, Cambridge (1957).
- [25] Cyrot, M., and Pavuna, D., *Introduction to Superconductivity and High- T_c Materials*, Editora World Scientific, Singapore, (1992).
- [26] Abrikosov, A. A., *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 32 (1957) 1442.

- [27] Blatter, G., Feigel'man, M. V., Geshkenbein, V. B., Larkin, A. I., and Vinokur, V. M., *Vortices in high-temperature superconductors.*, Rev. Mod. Phys., 66, 1125 (1994).
- [28] Orlando, T. P., Delin, K. A., *Foundations of Applied Superconductivity*, ed. Addison-Wesley Co., New York, (1991).
- [29] Lawrence, W. E., Doniach, S., "Proceedings of the 12th Int. Conf. on Low Temp. Physics", Kyoto, Japan, 1970 (Keigaku, Tokyo, 1971).
- [30] Schuller, I. K., *Synthetic modulated structures* / ed. by Leroy L. Chang, B. C. Giessen., Ed. Academic Press, Orlando (1985).
- [31] Klemm, R. A., Luther, A., Beasley, M. R., *Theory of the Upper Critical Field in Layered Superconductors*, Phys. Rev. B, 12 (1975) 877.
- [32] Ruggiero, S. T., Barbee Jr. T. W., Beasley, M. R., *Superconducting properties of Nb/Ge metal semiconductor multilayers*, Phys. Rev. B, 26 (1982) 4894.
- [33] Kanoda, K., Mazaki, H., Yamada, T., Hosoi, N., Shinjo, T., *Dimensional Crossover and commensurability effect in V/Ag superconducting multilayers*, Phys. Rev. B, 33 (1986) 2052.
- [34] Crabtree, G. W., Nelson, D. R., *Vortex Physics in High-Temperature Superconductors*, Phys. Today., April (1997) 38.
- [35] de Gennes, P. G., *Superconductivity of Metals and Alloys*, ed. Benjamin, New York. (1966).
- [36] de Gennes, P. G., *Boundary effects in Superconductors*, Rev. Mod. Phys., 36 (1964) 225.
- [37] Buzdin, A. I., *Proximity effects in superconductor-ferromagnet heterostructures.*, Rev. Mod. Phys., 77 (2005) 935.
- [38] Bulaevskii, L. N., Kuzii, V. V., Sobyanin, A. A., JETP Lett., 25 (1977) 290.
- [39] Buzdin, A. I., Kupriyanov, M. Y., JETP Lett., 52 (1990) 487.
- [40] Buzdin, A. I., Kupriyanov, M. Y., JETP Lett., 74 (1992) 124.
- [41] Radović, Z., Dobrosavljević-Grujić, L., Buzdin, A. I., Clem, J. R., *Transition temperatures of superconductor-ferromagnet superlattices*, Phys. Rev. B, 44 (1991) 759.

- [42] Jiang, J. S., Davidovic, D., Reich, D. H., Chien, C. L., *Oscillatory superconducting transition temperature in Nb/Gd multilayers*, Phys. Rev. Lett., 74 (1995) 314.
- [43] Jiang, J. S., Davidovic, D., Reich, D. H., Chien, C. L., *Superconducting transition in Nb/Gd/Nb trilayers*, Phys. Rev. B, 54 (1996) 6119.
- [44] Mühge, T., Theis-Bröhl, K., Westerholt, K., Garif'yanov, N. N., Goryunov, Y. V., Garifullin, I. A., Khaliullin, G. G., *Influence of magnetism on superconductivity in epitaxial Fe/Nb bilayer systems*, Phys. Rev. B, 57 (1998) 5071.
- [45] Aarts, J., Geers, J. M. E., Bruück, E., Golubov, A. A., Coehoorn, R., *Interface transparency of superconductor/ferromagnetic multilayers*, Phys. Rev. B, 56 (1997) 2779.
- [46] Tagirov, L. R., *Proximity effect and superconducting transition temperature in superconductor/ferromagnet sandwiches*, Physica C, 307 (1998) 145.
- [47] Lazar, L., Westerholt, K., Zabel, H., Tagirov, L. R., Goryunov, Y. V., Garif'yanov, N. N., Garifullin, I. A., *Superconductor/ferromagnet proximity effect in Fe/Pb/Fe trilayers*, Phys. Rev. B, 61 (2000) 3711.
- [48] Radović, Z., Dobrosavljevic-Grujic, L., Buzdin, A. I., Clem J. R., *Upper Critical Fields of superconductor-ferromagnet multilayers*, Phys. Rev. B, 38 (1988) 2388.
- [49] Ogrin, F. Y., Lee, S. L., Hillier, A. D., Mitchell, A., Shen, T. H., *Interplay between magnetism and superconductivity in Nb/Co multilayers*, Phys. Rev. B, 62 (2000) 6021.
- [50] Mattson, J. E., Potter, C. D., Conover, M. J., Sowers, C. H., Bader, S. D., *Critical fields of Fe₄N/NbN ferromagnetic/superconducting multilayers*, Phys. Rev. B, 55 (1997) 70.
- [51] Quantum Design. MPMS Users's Manual.
- [52] Als-Nielsen, J., McMorrow, D., *Elements of Modern X-ray Physics*, Ed. John Wiley & Sons. Ltd. (2001).
- [53] Heitmann, S., *Cobalt/Copper Multilayers: Interplay of Microstructure and GMR and Recrystallization as the Key Towards Temperature Stability*, Tese de Doutorado, Fakultät für Physik der Universität Bielefeld, (2004).
- [54] Cullity, B. D., *Elements of X-ray Diffraction*, ed. Addison Wesley, New York (1956).

- [55] Gu, Y. S., Chai, Z. H., Zhao, J. G., Li, M., Mei, L. M., Dong, C., Wu, F., Chen, H., *Structural Studies of Fe/Pd magnetic multilayers by x-ray diffraction*, Phys. Rev. B, 50 (1994) 6119.
- [56] Siqueira, E. C., de Lima, O. F., *Coupling Phenomena and vortex transitions in superconducting Ni/Nb multilayers*, J. Mat. Sci., (artigo aceito janeiro/2006).
- [57] Nishizaki, T., Sasaki, T., Fukase, T., Kobayashi, N., *Anomalous Magnetization and dimensional crossover of the vortex system in the organic superconductor κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu(NCS) $_2$* , Phys. Rev. B., 54 (1996) R3760.
- [58] Liang, R. Bonn, D. A., Hardy, W.N., *Discontinuity of Reversible Magnetization in Untwinned YBCO Single Crystals at First Order Vortex Melting Transition*, Phys.Rev. Lett. 76 (1996) 835.
- [59] Geshkenbein, V. B., Ioffe, L. B., Millis, A. J., *Theory of the resistive transition in overdoped $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$: Implications for the vortex viscosity and the quasiparticle scattering rate in high- T_c superconductors*, Phys. Rev. Lett., 80 (1998) 5778.
- [60] Maekawa, S., Ebisawa, H., Fukuyama, H., *Upper Critical Field in two-dimensional superconductors*, J.Phys. Soc. Jpn., 52 (1983) 1352.
- [61] Werthamer, N. R., Helfand, E., Hohenberg, P.C., *Temperature and Purity Dependence of the Superconducting Critical Field, H_{c2} III. Electron Spin and Spin Orbit Effects*, Phys. Rev., 147 (1966) 295.
- [62] Bulaevskii, L. N., Ginzburg, V. L., Sobyannin, A. A., Sov. Phys. JETP, 68 (1988) 1499.
- [63] Armenio, A. A., Mercaldo, L. V., Prischepa, S. L., Salvato, M., Attanasio, C., Maritato, L., *Scaling of $H_{c2\perp}$ in Nb/CuMn Multilayers*, J. Superc., 14 (2001) 411.
- [64] Schöck, M., Sürgers, C., Löhneysen, H.v., *Superconducting and magnetic properties of Nb/ $Pd_{1-x}Fe_x$ /Nb triple layers*, Eur. Phys. J. B, 14 (200) 1.
- [65] Okuma, S., Komori, F., Ootuka, Y., Kobayashi, S., *Superconducting Properties of Disordered Films of Zn*, J.Phys. Soc. Jpn., 52 (1983) 2639.
- [66] Cullity B. D., *Introduction to Magnetic Materials*, Ed. Addison-Wesley Pub.Co., (1972).
- [67] Navarro, E., Villegas, J.E., Vicent, J. L., *Superconducting and Structural Properties of Nb/Ni multilayers*, J. Mag. Mag. Mat., 240 (2002) 586.

- [68] Villegas, J. E., Navarro, E., Jaque, D., Gonzalez, E. M., Martín, J. I., Vicent, J. L., *Mixed-State Properties of Superconducting Nb/Ni superlattices*, Physica C, 369 (2002) 213.
- [69] Kryukov, S. A., de Long, L. E., Navarro, E., Villegas, J. E., Gonzalez, E. M., Vicent, J. L., *Magnetic Switching of Nb-Ni Multilayers Near the Superconducting Critical Temperature*, IEE Trans. Mag., 39 (2003) 2693.
- [70] de Long, L. E., Kryukov, S. A., Bosomtwi, A., Wentao, X.U., Navarro, E., Gonzalez, E. M., Vicent, J. L., Chengtao, Y.U., Pechan, M.J., *Superconductivity as a probe of magnetic switching and ferromagnetic stability in Nb/Ni multilayers*, Phil. Mag. & Phil. Mag. Lett., (“preprint”) (2006).