

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DA NATUREZA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA DE MATERIAIS**

DANIELA RODRIGUES BORBA VALADÃO

**ESTUDO DAS PROPRIEDADES SUPERCONDUTORAS DE
FILMES E BICAMADAS DE Nb, Sn e Pb**

Recife

2015

DANIELA RODRIGUES BORBA VALADÃO

**ESTUDO DAS PROPRIEDADES SUPERCONDUTORAS DE
FILMES E BICAMADAS DE Nb, Sn e Pb**

Tese submetida ao Programa de Pós-Graduação
em Ciência de Materiais do Centro de Ciências
Exatas e da Natureza da Universidade Federal
de Pernambuco como requisito para obtenção
do grau de Doutora em Ciência de Materiais.

Orientador: Prof. José Albino Oliveira de Aguiar
Co-orientadores: Prof. Eduardo Padrón Hernández
Dra. Giovanna Machado

Recife

2015

Catálogo na fonte
Bibliotecária Joana D'Arc Leão Salvador CRB4-532

V136e Valadão, Daniela Rodrigues Borba.
Estudo das propriedades supercondutoras de filmes e bicamadas de Nb, Sn e Pb / Daniela Rodrigues Borba Valadão. – Recife: O Autor, 2015.
134 f.: fig., tab.

Orientador: José Albino Oliveira de Aguiar.
Tese (Doutorado) – Universidade Federal de Pernambuco. CCEN. Ciência de Materiais, 2015.
Inclui referências e apêndice.

1. Supercondutores. 2. Filmes finos. I. Aguiar, José Albino de Oliveira (Orientador). II. Título.

537.623 CDD (22. ed.) UFPE-FQ 2015-20

DANIELA RODRIGUES BORBA VALADÃO

**ESTUDO DAS PROPRIEDADES SUPERCONDUTORAS DE FILMES E
BICAMADAS DE Nb, Sn E Pb**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciência de Materiais da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Doutora em Ciência de Materiais.

Aprovada em: ____/____/____.

BANCA EXAMINADORA

Prof^o. Dr. José Albino Oliveira de Aguiar (Orientador)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof^o. Dr. Severino Leopoldino Urtiga Filho (Examinador Externo)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof^o. Dr. Petrucio Barrozo da Silva (Examinador Externo)
Universidade Federal de Sergipe

Prof^o. Dr. Marco Antonio Sacilotti (Examinador Interno)
Université de Bourgogne

Prof^o. Dr. Edilson Lucena Falcão Filho (Examinador Interno)
Universidade Federal de Pernambuco

Aos meus pais Daniel e Josefa,
aos meus irmãos Eliane, Jocsã e Elaine e
ao meu esposo José de Arimatéia, por todo amor, apoio e incentivo.

RESUMO

Neste trabalho estudamos dois sistemas supercondutores, o primeiro constituído dos filmes de chumbo (Pb), germânio (Ge) e nióbio (Nb) e a tricamada Pb/Ge/Nb na presença de centros de ancoragem. Os centros de ancoragem foram construídos de membrana de alumina porosa (AAO) preenchida com nanofios de níquel (Ni). O crescimento das membranas se deu por meio de processo eletroquímico a partir de discos de alumínio e os nanofios foram eletrodepositados a partir de uma solução contendo os íons de Ni. Os filmes de Pb e Ge foram crescidos por evaporação e os filmes de Nb foram crescidos por deposição via sputtering DC. Estas amostras foram caracterizadas por microscopia eletrônica de varredura, medidas de magnetização em função da temperatura e do campo aplicado e medidas de susceptibilidade AC. O segundo sistema consistiu em bicamadas de nióbio (Nb) e estanho (Sn), com diferentes espessuras das camadas, e seus respectivos filmes de referência. Estas amostras foram caracterizadas por microscopia eletrônica de varredura, microscopia de força atômica e difração de raios X de baixo ângulo, também foi realizada a caracterização das propriedades supercondutoras por meio de medidas de magnetização em campo perpendicular e transporte elétrico em campo perpendicular e paralelo ao plano das camadas. As caracterizações microestruturais e morfológicas dos dois grupos de amostras indicam boa qualidade das amostras e é corroborado pelas caracterizações supercondutoras. Através da caracterização das propriedades supercondutoras verificamos que as T_c 's dos sistemas estão de acordo com os dados reportados na literatura. As medidas de magnetização apresentaram *flux jumps*, para quase todas as amostras, que foram atribuídos a instabilidades termomagnéticas. Foram obtidos os comprimentos característicos e os campos críticos das bicamadas Nb/Sn como função da espessura das camadas. Os comprimentos característicos encontrados, para o sistema Nb/Sn, indicam que tanto as bicamadas quanto os filmes de referência são supercondutores do tipo II. Os diagramas de campo crítico superior das bicamadas mostram comportamentos não convencionais que podem ser atribuídos a uma mudança de comportamento 2D para 3D das camadas de Nb.

Palavras-chave: Bicamadas supercondutoras. Ancoragem de vórtices. Efeito de proximidade.

ABSTRACT

In this work we studied two superconducting systems, the first consisting of lead (Pb), germanium (Ge) and niobium (Nb) films, and trilayer Pb/Ge/Nb in the presence of pinning centers. The pinning centers were constructed of porous alumina membrane (AAO) filled with nickel nanowires (Ni). The AAO were grown by electrochemical process from aluminum disks and the Ni nanowires are electrodeposited from a solution containing Ni ions. The Pb and Ge films were grown by evaporation and Nb films were grown by DC sputtering deposition. These samples were characterized by scanning electron microscopy, magnetization measurements as a function of temperature and applied field and AC susceptibility measurements. All measurements were performed with the applied field perpendicular to the plane of the films. The second samples group was constituted of niobium (Nb) and tin (Sn) bilayers, with different layer thicknesses and their corresponding reference films. This group was characterized by scanning electron microscopy, atomic force microscopy and small angle X-ray diffraction, was also performed superconducting characterization through magnetization in perpendicular field and electric transport measurements with applied field applied, both perpendicular and parallel to the samples plane. The microstructural and morphological characterizations of the two groups indicate good quality of samples and it is supported by superconducting characterizations. The transition temperature of all superconducting samples prepared were found to be in agreement with the literature. The magnetization measurements showed flux jumps, to almost all samples, which are attributed to thermomagnetic instabilities. The characteristic lengths, found for the Nb/Sn system, indicate that bilayer and the reference films are type II superconductors. The bilayers upper critical field phase diagrams show unconventional behavior that may be a consequence of a crossover from 2D to 3d of Nb layer.

Keywords: Superconducting bilayers. Vortex pinning. Proximity effect.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1: Dependência da resistividade elétrica com a temperatura para materiais condutores normais e materiais supercondutores na vizinhança de 0 K [3].	19
Figura 2: Comportamento do campo magnético com a temperatura [6].	19
Figura 3: Relação campo magnético versus temperatura para (a) supercondutor do tipo I e (b) supercondutor do tipo II [6].	23
Figura 4: Estrutura de um vórtice, mostrando o comprimento de coerência e do comprimento de penetração [11].	24
Figura 5: Diagrama das redes de vórtices a) quadrada e b) retangular. As linhas pontilhadas mostram a célula unitária [11].	24
Figura 6: Primeira imagem da rede de vórtice realizada em uma amostra de Pb-at4%In [13].	25
Figura 7: Magnetização FCC para a amostra texturizada de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ nos campos citados aplicados ao longo do plano ab [22].	27
Figura 8: Dependência da temperatura crítica dos filmes de Nb com o tamanho de grão (D) [35].	30
Figura 9: Dependência da temperatura crítica (círculos) e da resistividade em 10 K (quadrados) em função da espessura de filmes de Nb (os símbolos fechados são valores dos filmes como depositados, os símbolos abertos são valores medidos após modelação de pontes) [39].	32
Figura 10: a) Campo crítico superior em função da temperatura para a amostra de NSTO, para campo magnético aplicado perpendicular ao plano da amostra (quadrados, os dados foram multiplicados por 10 para melhor visualização) e paralelo ao plano (círculos). As linhas pontilhadas são os ajustes com a teoria de Ginzburg-Landau linearizada. b) Completa dependência angular do campo crítico superior, a linha pontilhada é o ajuste com a equação de dependência angular [44].	34
Figura 11: Campo crítico superior perpendicular como função da temperatura reduzida para filme de nióbio de 40 nm, depositado em um arranjo de nanofios de níquel (linha preta) e em um substrato de alumina (linha vermelha) [50].	36
Figura 12: Resistividade em função da temperatura para filmes de Pb/Bi depositados sobre um arranjo de nanofios de Co (círculos abertos) e em substrato de vidro (círculos fechados) [51].	36

Figura 13: Representação do campo magnético ao redor de um elipsoide prolato [52].	37
Figura 14: Característica da dependência espacial do parâmetro de ordem supercondutor em uma interação a) supercondutor/normal e b) supercondutor/ferromagneto [69].	42
Figura 15: Curva do campo crítico superior em função da temperatura reduzida, modelo de Lawrence e Doniach. As linhas tracejadas mostram uma comparação com os modelos 3D e 2D [54].	46
Figura 16: Campos críticos superiores próximos da temperatura crítica para multicamadas de Nb/Ge. Com o aumento da espessura das camadas de Ge sistema passa do comportamento 3D para o comportamento de mudança de dimensionalidade e finalmente para o comportamento 2D [91].	46
Figura 17: Esquema do modelo Takahashi-Tachiki ilustrando as regiões 2D e 3D e o ponto onde a nucleação da supercondutividade muda da camada S' para a camada S [54].	47
Figura 18: (a) Estrutura idealizada da alumina porosa. (b) Visão lateral da membrana [96].	52
Figura 19: Imagem do programa de medidas do perfilômetro, com as regiões de medida em verde e referência em vermelho, para a amostra de Nb(500nm).	65
Figura 20: Vista superior do porta amostra utilizado no PPMS. a) Sem amostra e b) com amostra.	66
Figura 21: Diagrama da construção das amostras depositadas em AAONi.	68
Figura 22: Imagens de MEV das membranas. a) Superfície com destaque para as regiões de auto-ordenamento. b) Superfície com destaque para o ordenamento hexagonal dos poros. c) Seção transversal da membrana com nanofios. d) Tamanho dos nanofios.	70
Figura 23: Micrografia de transmissão de um nanofio de níquel extraído da membrana.	70
Figura 24: Curvas de magnetização normalizadas em função do campo aplicado na direção paralela ao eixo dos nanofios (curvas em azul) e perpendicular (curvas em preto) em a) 300 K e b) 7,2 K. Ms representa o valor da magnetização de saturação para cada caso.	71
Figura 25: Susceptibilidade AC em função da temperatura para as amostras de a) AAONi-Pb/Ge/Nb e Si-Pb/Ge/Nb, b) AAONi-Pb/Ge e Si-Pb/Ge e c) AAONi-Nb e Si-Nb.	72
Figura 26: Magnetização em função da temperatura para as amostras de a) AAONi-Pb/Ge/Nb, b) Si-Pb/Ge/Nb, c) AAONi-Pb/Ge, d) Si-Pb/Ge, e) AAONi-Nb e f) Si-Nb.	73
Figura 27: Magnetização em função do campo para as amostras de a) AAONi-Pb/Ge/Nb, b) Si-Pb/Ge/Nb, c) AAONi-Pb/Ge e d) Si-Pb/Ge.	75
Figura 28: Primeiro ramo das curvas de magnetização em função do campo para as amostras de a) AAONi-Pb/Ge/Nb, b) Si-Pb/Ge/Nb, c) AAONi-Pb/Ge, d) Si-Pb/Ge e e) AAONi-Nb.	76

Figura 29: Difrátogramas de baixo ângulo dos filmes de Sn com diferentes espessuras.....	78
Figura 30: Imagens de MEV dos filmes de a) Sn(100nm), b) Sn(200nm), c) Sn(500nm).....	79
Figura 31: Imagens de AFM dos filmes de a) Sn(50nm) e b) Sn(100nm). As imagens à esquerda apresentam a morfologia superficial, 2D, enquanto que as imagens à direita mostram a morfologia 3D, destacando a rugosidade dos filmes.	80
Figura 32: Perfil de perfilometria do filme de Sn(500nm).....	81
Figura 33: Difrátogramas de baixo ângulo dos filmes de Nb com diferentes espessuras.	82
Figura 34: Imagens de MEV dos filmes de a) Nb(100nm) e b) Nb(200nm). d) Seção transversal do filme de Nb(500nm).	83
Figura 35: Imagens de AFM dos filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm) e c) Nb(200nm). As imagens à esquerda mostram a morfologia superficial, 2D, enquanto que as imagens à direita mostram a morfologia 3D, destacando a pouca rugosidade dos filmes.	84
Figura 36: Perfil de perfilometria do filme de Nb(500nm).	85
Figura 37: Difrátogramas de baixo ângulo das bicamadas de Nb/Sn com diferentes espessuras.	86
Figura 38: Imagens de MEV das bicamadas de a) Nb(100nm)/Sn(100nm), b) Nb(200nm)/Sn(200nm) e c) Nb(500nm)/Sn(500nm).....	87
Figura 39: Imagens de AFM das bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm) e c) Nb(200nm)/Sn(200nm). As imagens à esquerda mostram a morfologia superficial, 2D, enquanto que as imagens à direita apresentam a morfologia 3D, destacando a rugosidade das bicamadas.	88
Figura 40: a) Transição supercondutora na ausência de campo magnético aplicado, b) razão da resistividade residual e c) dependência do parâmetro Δ com a espessura das amostras de Sn, Nb e Nb/Sn.	90
Figura 41: Resistividade normalizada pelo valor da resistividade em 4,5 K, $\rho_{4,5K}$, em função da temperatura na ausência de campo magnético para o filme de a) Sn(100nm), b) Sn(200nm) e c) Sn(500nm). Os detalhes mostram a derivada da resistividade em função da temperatura, de onde é obtida a temperatura crítica dos filmes.....	91
Figura 42: Resistividade normalizada pelo valor de $\rho_{4,5K}$ em função da temperatura, com diversos campos magnéticos aplicados perpendicular ao plano, para o filme de a) Sn(100nm), b) Sn(200nm) e c) Sn(500nm).	92
Figura 43: Magnetoresistividade normalizada para diversos valores de temperatura, com campo aplicado perpendicular ao plano, dos filmes de a) Sn(100nm), b) Sn(200nm) e c) Sn(500nm).	93

Figura 44: Magnetoresistividade normalizada para diversos valores de temperatura, com campo aplicado paralelo ao plano, dos filmes de a) Sn(200nm) e b) Sn(500nm).....	93
Figura 45: Resistividade normalizada, em função da temperatura, para os filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) na ausência de campo aplicado. As temperaturas críticas foram obtidas a partir das derivadas da resistividade como função da temperatura, como mostram os detalhes.	95
Figura 46: Resistividade normalizada, com campo perpendicular, em função da temperatura para os filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) com diversos campos aplicados.	96
Figura 47: Magnetoresistividade perpendicular normalizada dos filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) para diversos valores de temperatura.	97
Figura 48: Magnetoresistividade paralela normalizada dos filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) para diversos valores de temperatura.	98
Figura 49: Resistividade normalizada, em função da temperatura, para as bicamadas a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) na ausência de campo aplicado. As temperaturas críticas foram obtidas a partir das derivadas da resistividade em função da temperatura, como mostram os detalhes.	99
Figura 50: Resistividade normalizada, com campo perpendicular, em função da temperatura, para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) para diversos campos aplicados.	100
Figura 51: Resistividade normalizada, com campo paralelo, em função da temperatura, para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) para diversos campos aplicados.	101
Figura 52: Magnetoresistividade perpendicular normalizada das bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) para diversos valores de temperatura.	102
Figura 53: Magnetoresistividade paralela normalizada das bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) para diversos valores de temperatura.	103
Figura 54: Magnetização em função da temperatura para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm). O campo magnético foi aplicado perpendicular ao plano.....	104

Figura 55: Curvas de histerese para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm). O campo magnético foi aplicado perpendicular ao plano.	105
Figura 56: Primeiro ramo da curva de histerese, em diversas temperaturas, para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm). O campo magnético foi aplicado perpendicular ao plano.....	106
Figura 57: Critério de obtenção de $\mu_0 H_{C2}$ a partir de 50% do valor da ρ_{nHN} para o filme de Sn(100nm).	107
Figura 58: Diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ para os filmes de a) Sn(100nm) em campo perpendicular e b) Sn(200nm) e c) Sn(500nm) em ambas as orientações de campo aplicado.	108
Figura 59: Diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ para os filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) em ambas as orientações de campo aplicado.	110
Figura 60: Diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) em ambas as orientações de campo aplicado.	114
Figura 61: Diagramas dos campos críticos inferiores para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) com campo aplicado perpendicular.	117
Figura 62: Medidas ZFC e FC realizadas na amostra para campo magnético de 1 T aplicado ao longo do eixo c. Um estado paramagnético é claramente observado abaixo da temperatura crítica durante o processo FC, caracterizando o PME.....	131
Figura 63: a) Momento magnético FC em função da temperatura para campos magnéticos de 0,05 T até 1 T, aplicados ao longo do plano ab. Momentos paramagnéticos podem ser observados, caracterizando o PME. b) O estado paramagnético persiste em campo magnético tão alto quanto 10 T.	132
Figura 64: Momento magnético FC como função da temperatura para campos magnéticos de 0,15 T até 3 T, aplicados ao longo do eixo c. O PME aumenta com o aumento do campo magnético, contudo, para um campo magnético maior que 3 T o efeito mostra um aparente redução.	133
Figura 65: Momento magnético FC em função do campo magnético em 72 K e para H//c, baseado nos resultados da Fig. 63. Os resultados mostra uma aparente tendência à saturação do PME.	134

LISTA DE TABELAS

Tabela 1: Parâmetros utilizados para a deposição de Pb, Ge e Nb.....	60
Tabela 2: Parâmetros utilizados para a deposição de Nb e Sn.	60
Tabela 3: Parâmetros volumétricos dos supercondutores Nb e Pb [9].....	68
Tabela 4: Parâmetros volumétricos dos supercondutores Nb e Sn [9].....	77
Tabela 5: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ em campo perpendicular, para os filmes de Sn.	109
Tabela 6: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ em campo paralelo, para os filmes de Sn.	109
Tabela 7: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ em campo perpendicular, para os filmes de Nb.	111
Tabela 8: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ em campo paralelo, para os filmes de Nb.....	111
Tabela 9: Comprimentos de coerência e parametros de Ginzburg-Landau dos filmes de Nb obtidos pelas Equações 36 e 39, respectivaente, para campo perpendicular.....	112
Tabela 10: Comprimentos de coerência e parametros de Ginzburg-Landau dos filmes de Nb obtidos pelas Equações 36 e 39, respectivaente, para campo paralelo.....	113
Tabela 11: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ em ambas as orientações de campo aplicado, para as bicamadas de Nb/Sn...	114
Tabela 12: Comprimentos de coerência e parametros de Ginzburg-Landau das bicamadas de Nb/Sn obtidos pelas Equações 36 e 39, respectivaente, para campo perpendicular.	115
Tabela 13: Comprimentos de coerência e parametros de Ginzburg-Landau das bicamadas de Nb/Sn obtidos pelas Equações 36 e 39, respectivaente, para campo paralelo.....	115

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO	16
2. INTRODUÇÃO À SUPERCONDUTIVIDADE	18
2.1 A descoberta da supercondutividade.....	18
2.2 Teorias da supercondutividade	20
2.2.1 Teoria de London.....	20
2.2.2 Teoria de Ginzburg-Landau.....	21
2.2.3 Teoria BCS	22
2.3 Classificação dos supercondutores.....	22
2.4 Vórtices no supercondutor tipo II.....	23
2.4.1 Movimento e ancoragem de vórtices.....	25
2.5 Efeito Meissner Paramagnético.....	26
3. FILMES FINOS E MULTICAMADAS.....	29
3.1 Filmes Finos Supercondutores	29
3.1.1 Temperatura crítica.....	30
3.1.2 Campo crítico superior	32
3.1.3 Ancoragem de vórtices	35
3.1.4 Fator de desmagnetização.....	37
3.2 Multicamadas.....	39
3.2.1 Supercondutor/Isolante (S/I)	39
3.2.2 Supercondutor/Metal Normal (S/N)	40
3.2.3 Supercondutor/Ferromagnético (S/F)	41
3.2.4 Supercondutor/Supercondutor (S/S')	42
3.3 Dimensionalidade de multicamadas supercondutoras.....	43
3.3.1 Modelo de Lawrence e Doniach.....	44
3.3.2 Modelo de Takahashi e Tachiki em multicamadas S/S'	47
4. PREPARAÇÃO E CARACTERIZAÇÃO	49
4.1 Preparação	50
4.1.1 Síntese das membranas de alumina porosa.....	50
4.1.2 Deposição dos nanofios de níquel	55

4.1.3 Deposição dos filmes supercondutores	57
4.2 Caracterização	60
4.2.1 Difração de raios X.....	60
4.2.2 Microscopia Eletrônica de Varredura.....	62
4.2.3 Microscopia Eletrônica de Transmissão.....	63
4.2.4 Microscopia de Força Atômica.....	63
4.2.5 Perfilometria	64
4.2.6 Caracterização elétrica.....	65
4.2.7 Caracterização magnética	66
5. TRICAMADA DE Pb/Ge/Nb COM CENTROS DE ANCORAGEM	
MAGNÉTICOS	68
5.1 Caracterização morfológica.....	69
5.2 Caracterização magnética e supercondutora.....	71
6. BICAMADAS DE Nb/Sn.....	77
6.1 Caracterização estrutural	78
6.1.1 Sn	78
6.1.2 Nb	81
6.1.3 Nb/Sn	85
6.2 Caracterização supercondutora	89
6.2.1 Sn	90
6.2.2 Nb	94
6.2.3 Nb/Sn	98
6.3 Campos críticos.....	106
6.3.1 Sn	107
6.3.2 Nb	109
6.3.3 Nb/Sn	113
7. CONCLUSÃO	118
8. PERSPECTIVAS.....	120
REFERÊNCIAS	121

APÊNDICE A – EFEITO MEISSNER PARAMAGNÉTICO EM	
YBa₂Cu₃O_{7-δ} DEVIDO A PRESENÇA DE NANOPARTÍCULAS DE	
Ba₂YTaO₆	131

1. INTRODUÇÃO

A pesquisa em filmes finos supercondutores sempre foi alvo de atenção em supercondutividade, isto se deve ao fato de que as propriedades supercondutoras de filmes finos diferem das propriedades dos materiais volumétricos dos quais eles são feitos. Essas mudanças nas propriedades são provocadas pela quantidade de defeitos presentes na estrutura cristalina, em comparação ao material volumétrico, que reduz o livre caminho médio dos elétrons e provoca mudanças na interação elétron-elétron e elétron-fônon [1]. Também tem sido alvo de muitas pesquisas as multicamadas supercondutoras, que são intercaladas por filmes de materiais supercondutores (S) e não supercondutores (NS) e são investigadas quanto à interação entre as camadas e a força de acoplamento entre elas. O estudo dessas multicamadas, constituídas por diferentes materiais não supercondutores, tem revelado diferentes propriedades e características originadas a partir do efeito de proximidade, o qual faz com que a supercondutividade das camadas S se propague através das camadas NS. Dentre as principais propriedades do estudo experimental nesses sistemas estão a temperatura de transição supercondutora e o campo crítico superior.

Embora seja uma área de bastante interesse, poucos são os trabalhos que retratam as propriedades supercondutoras de sistemas supercondutor/supercondutor (S/S'), isto é, de sistemas constituídos por dois materiais supercondutores, e como o efeito de proximidade modifica as características dos sistemas. Um estudo de grande relevância em estruturas S/S' foi realizado por Takahashi e Tachiki, neste estudo eles demonstraram teoricamente o aparecimento de uma anomalia nos diagramas de campo crítico superior que surge em decorrência do efeito de proximidade [2]. Também, até o momento, não tem sido encontrado na literatura o estudo de ancoragem de vórtices, por meio de centros de ancoragem, em sistemas multicamadas.

Este trabalho tem como objetivos estudar os efeitos de proximidade entre materiais supercondutores e os efeitos da presença de centros de ancoragem nesses sistemas. Bem como, analisar as mudanças na temperatura crítica e nos campos críticos em função do aumento da espessura das camadas supercondutoras em sistemas S/S' e seus respectivos filmes de referência.

No presente trabalho estudamos as propriedades supercondutoras da bicamada de Nb/Sn em função da espessura das camadas, depositada em substratos de Si, e da tricamada

de Pb/Ge/Nb na presença de centros de ancoragem magnéticos. O estudo se baseia nas curvas de susceptibilidade AC, resistividade e magnetização em função da temperatura e do campo aplicado, incluindo o estudo das respectivas amostras de referência.

No capítulo 2 é realizada uma revisão sobre as principais características do estado supercondutor. As teorias que explicam a supercondutividade e os supercondutores do tipo I e tipo II também serão abordadas, assim como os vórtices no supercondutor do tipo II. Ao final é realizada uma breve discussão sobre o Efeito Meissner Paramagnético.

No capítulo 3 é descrita a supercondutividade em filmes finos e multicamadas. São discutidas as mudanças que podem ocorrer em filmes finos, bem como a ancoragem de vórtices com destaque a ancoragem por centros de ancoragem magnéticos. Os efeitos de proximidade que ocorrem em sistemas supercondutor/não-supercondutor e supercondutor/supercondutor também são abordados e alguns trabalhos relevantes em multicamadas são discutidos.

No capítulo 4 são abordadas as técnicas de preparação e caracterização utilizadas para o desenvolvimento do trabalho.

No capítulo 5 serão discutidos os resultados obtidos para a tricamada de Pb/Ge/Nb e as amostras de referência desse sistema a partir da caracterização morfológica, medidas de susceptibilidade AC e medidas de magnetização em função da temperatura e do campo aplicado. No capítulo 6 são apresentados e discutidos os resultados obtidos para a bicamada de Nb/Sn com diversas espessuras e as respectivas amostras de referência. Caracterização estrutural, morfológica e medidas de resistividade e magnetização em função da temperatura e do campo aplicado farão parte desta discussão.

As conclusões e perspectivas desta pesquisa serão apresentadas no capítulo 7 e 8, respectivamente.

2. INTRODUÇÃO À SUPERCONDUTIVIDADE

Neste capítulo serão abordadas as teorias necessárias para o entendimento da supercondutividade e para as discussões deste trabalho. Será sucintamente descrita a descoberta da supercondutividade, as teorias que a explicam, a classificação dos supercondutores e vórtices em supercondutores do tipo II. Também será abordado o Efeito Meissner Paramagnético.

2.1 A descoberta da supercondutividade

O fenômeno da supercondutividade foi descoberto em 1911 por Heike Kamerlingh Onnes, em Leiden, na Holanda. Após a liquefação do hélio em 1908, pesquisando a resistividade elétrica do mercúrio, a baixas temperaturas, ele percebeu que esse material perdia abruptamente a sua resistividade quando resfriado a temperatura de 4,2 K. Materiais que exibem esse comportamento são chamados de supercondutores. A temperatura na qual a resistividade se anula é chamada temperatura crítica ou temperatura de transição supercondutora, pois o material passa do estado normal para o estado supercondutor. O comportamento da resistividade em relação à temperatura para materiais supercondutores e não supercondutores pode ser visualizado na Figura 1. A resistividade elétrica diminui gradualmente, se aproximando de um valor pequeno e não nulo, para a maioria dos metais de alta pureza resfriados a temperaturas próximas de 0 K. Já para os materiais supercondutores a resistividade elétrica cai bruscamente para zero na temperatura de transição supercondutora.

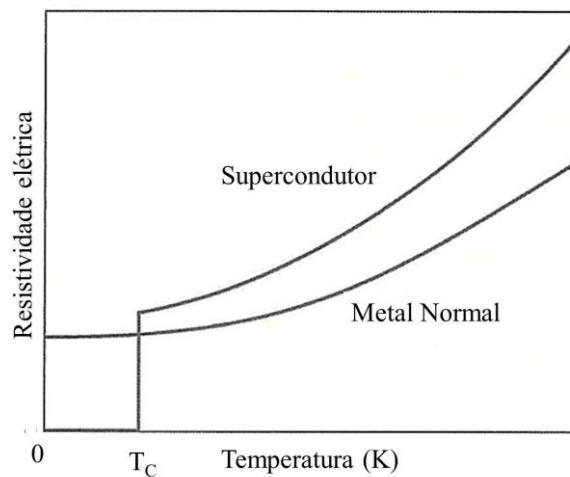


Figura 1: Dependência da resistividade elétrica com a temperatura para materiais condutores normais e materiais supercondutores na vizinhança de 0 K [3].

Além da resistividade nula, um supercondutor também apresenta outra propriedade característica que é o Efeito Meissner, descoberto em 1933 por Walther Meissner e Robert Ochsenfeld [4]. Eles descobriram que um supercondutor, quando é resfriado na presença de um campo menor que o campo crítico H_C , abaixo da temperatura crítica T_C , expulsa totalmente o campo magnético de seu interior, obtendo, portanto, um comportamento diamagnético perfeito.

A supercondutividade, e com ela o efeito Meissner, não persistem a altos campos magnéticos [5]. Para cada temperatura há um campo crítico, bem definido, para o qual a supercondutividade desaparece, esse comportamento pode ser visto na Figura 2.

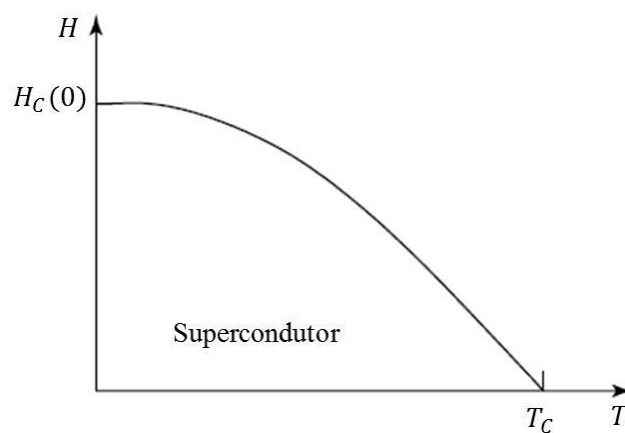


Figura 2: Comportamento do campo magnético com a temperatura [6].

A supercondutividade pode ser observada em diversos materiais, tais como elementos metálicos, cerâmicos, ligas e compostos intermetálicos. Em condições normais de pressão e temperatura existem mais de 25 elementos supercondutores. Outros elementos tornam-se supercondutores quando submetidos a pressões muito elevadas ou quando são preparados em forma de filmes finos ou agregados granulares [7].

2.2 Teorias da supercondutividade

Desde a descoberta da supercondutividade várias teorias foram desenvolvidas no intuito de entender/explicar esse fenômeno, entre elas as teorias fenomenológicas de London e de Ginzburg-Landau, e a teoria microscópica BCS. Neste trabalho faremos uma pequena abordagem conceitual sobre cada uma dessas teorias e suas contribuições para o entendimento do fenômeno da supercondutividade.

2.2.1 Teoria de London

A teoria de London proposta em 1935, pelos irmãos Fritz e Heinz London [8], explicou com sucesso o efeito Meissner. Nela considera-se a existência de portadores de carga “normal” e portadores de carga “supercondutor”. Se $T < T_c$ existirão no material supercondutor elétrons “supercondutores”, cuja concentração é n_s , e elétrons “normais” com concentração de $n - n_s$, onde n é a concentração total de elétrons de condução. A densidade de elétrons supercondutores é dependente da temperatura, ou seja, diminui quando a temperatura aumenta e se anula em $T = T_c$. Quando a temperatura se aproxima do zero absoluto a corrente de elétrons supercondutores flui sem resistência. Das equações propostas por London é possível obter o parâmetro λ_L , que mede a profundidade de penetração do campo magnético no supercondutor, e é conhecida como comprimento de penetração de London,

$$\lambda_L^2 = \frac{\epsilon_0 m c^2}{e^2 n_s}, \quad (1)$$

onde ϵ_0 é a permissividade elétrica do vácuo, n_s é a concentração de partículas de carga e e massa m . As linhas de campo magnético penetram no material supercondutor na profundidade λ_L e são exponencialmente atenuadas até se anularem.

2.2.2 Teoria de Ginzburg-Landau

V. L. Ginzburg e L. D. Landau desenvolveram uma teoria fenomenológica para explicar as propriedades termodinâmicas da transição do estado normal para o estado supercondutor, em 1950. Um ponto fundamental foi a introdução do conceito de um parâmetro de ordem, este parâmetro desaparece em altas temperaturas, $T > T_c$, mas adquire um valor não nulo abaixo da temperatura de transição $T < T_c$ [5]. As primeiras discussões trouxeram a ideia de que a supercondutividade é algum tipo de estado quântico macroscópico. Ginzburg e Landau assumiram a ideia de uma função de onda macroscópica ψ , que eles tomaram como parâmetro de ordem associado à supercondutividade. Expandindo a energia livre do estado supercondutor em função do parâmetro de ordem, tem-se [5,9]:

$$F = F(T) + \alpha|\psi|^2 + \beta|\psi|^4, \quad (2)$$

onde $F(T)$ refere-se ao estado normal e α e β são parâmetros fenomenológicos. A função de onda ψ está associada com elétrons supercondutores pela relação $|\psi|^2 = n_s$ [5].

A ideia central da teoria de Ginzburg-Landau é encontrar funções que minimizem a energia livre total do sistema. A partir dessa teoria são definidos parâmetros físicos que descrevem o comportamento do supercondutor. São eles:

- Comprimento de coerência:

A partir da solução unidimensional da equação de Ginzburg-Landau, sem campo aplicado, define-se o comprimento de coerência de um supercondutor. Este parâmetro representa o comprimento ao longo do qual o parâmetro de ordem ψ varia e é dado por:

$$\xi^2 = \frac{\hbar^2}{2m\alpha}. \quad (3)$$

- Comprimento de penetração:

Considerando uma situação onde o supercondutor encontra-se na presença de um campo magnético aplicado e o parâmetro de ordem é praticamente uma constante, pode-se definir o comprimento de penetração como:

$$\lambda^2 = \frac{\epsilon_0 m c^2}{e^2 |\psi_0|^2}. \quad (4)$$

Observa-se que esta expressão é semelhante à expressão de London, pois dentro da teoria de Ginzburg-Landau $|\psi|^2 = n_s$.

2.2.3 Teoria BCS

Bardeen, Cooper e Schrieffer desenvolveram a teoria microscópica da supercondutividade em 1957 [9]. É uma teoria que conseguiu explicar o fenômeno da supercondutividade que ocorre principalmente nos materiais que possuem temperatura crítica abaixo de 30 K. A teoria BCS explica a origem da supercondutividade dando fundamento às teorias de London e Ginzburg-Landau. O fenômeno base dessa teoria é a formação dos pares de Cooper, que são formados por dois elétrons que interagem entre si por meio de um fônon e são responsáveis pelas supercorrentes [9]. Considerando a interação Coulombiana os pares de Cooper não poderiam ser formados, pois se trata de dois elétrons, porém, uma contribuição da rede cristalina permite a formação dos pares. Segundo a teoria, ao se movimentarem, os elétrons atraem íons positivos da rede cristalina, produzindo uma deformação local. O movimento de cargas provoca uma vibração na rede cristalina, onde um quantum dessa vibração é chamado de fônon. O fônon criado se propaga na rede e atinge outro elétron, ocorrendo assim uma interação. O par de Cooper é formado por elétrons com spins opostos e momentos lineares, no espaço k , iguais em módulo, porém de sentidos opostos [7].

2.3 Classificação dos supercondutores

A razão, adimensional, entre o comprimento de coerência e o comprimento de penetração define um parâmetro importante da teoria da supercondutividade, o parâmetro de Ginzburg-Landau, $\kappa = \frac{\lambda}{\xi}$ [10]. Os diferentes valores dessa razão resultam em dois tipos de comportamento para os supercondutores. Os supercondutores do tipo I correspondem aos materiais que possuem $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$ e os supercondutores do tipo II possuem $\kappa > \frac{1}{\sqrt{2}}$.

Os supercondutores do tipo I se comportam como descrito pelo efeito Meissner, ou seja, expulsam completamente o campo magnético, inferior ao campo crítico, de seu interior. Para campos mais intensos a supercondutividade é destruída. Nos supercondutores do tipo II, os campos magnéticos com intensidades menores que H_{c1} , o campo crítico inferior, são completamente expulsos do interior do supercondutor. No intervalo $H_{c1} < H < H_{c2}$, com H_{c2} sendo o campo crítico superior, o campo magnético penetra no material por meio de tubos de fluxo magnético, em unidades quantizadas chamadas vórtices. Para campos mais intensos que H_{c2} , a supercondutividade é destruída. O comportamento para os dois tipos de supercondutores é mostrado na Figura 3.

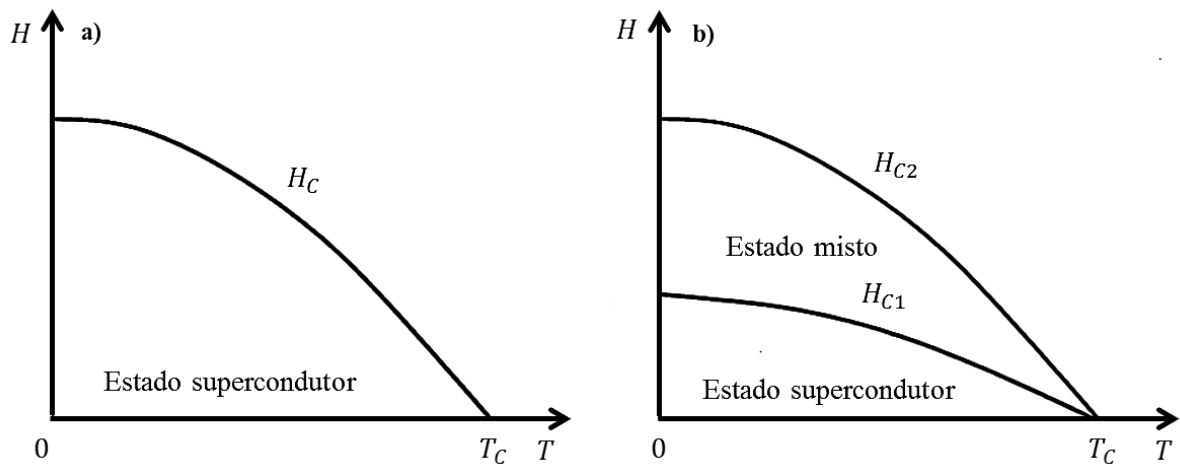


Figura 3: Relação campo magnético versus temperatura para (a) supercondutor do tipo I e (b) supercondutor do tipo II [6].

2.4 Vórtices no supercondutor tipo II

Os vórtices, presentes no estado misto, recebem essa nomenclatura devido às supercorrentes circundantes que eles geram. No centro de cada vórtice a supercondutividade é destruída [6], ou seja, a densidade de elétrons supercondutores é nula, $|\psi|^2 = 0$. Por outro lado, o campo magnético, H^* , no centro do vórtice tem seu valor máximo. A Figura 4 mostra o comportamento da densidade de elétrons supercondutores e do campo magnético devido a um vórtice situado na origem. É também mostrado os comprimentos de coerência e de penetração.

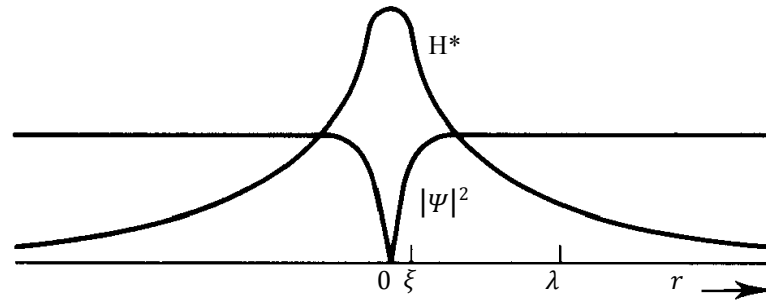


Figura 4: Estrutura de um vórtice, mostrando o comprimento de coerência e do comprimento de penetração [11].

Pode-se observar, na Figura 4, que a densidade de elétrons supercondutores é nula no centro do vórtice enquanto o campo magnético atinge seu valor máximo.

Em 1957 Abrikosov propôs que no estado misto os vórtices não penetram no supercondutor em um único domínio, mas em um arranjo de tubos de fluxo magnético [12]. Abrikosov estudou dois arranjos, uma rede quadrada e uma triangular de vórtices, conforme mostrado na Figura 5. A rede triangular é a rede mais estável e é conhecida como rede de Abrikosov.

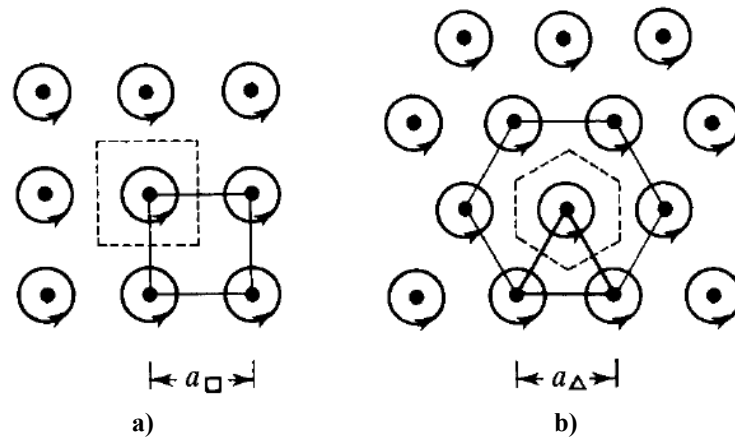


Figura 5: Diagrama das redes de vórtices a) quadrada e b) triangular. As linhas pontilhadas mostram a célula unitária [11].

Em condições ideais os vórtices se distribuem uniformemente no material e aumentam sua densidade quando se aumenta o campo magnético aplicado, mantendo uma estrutura ordenada, formando, em geral, uma rede hexagonal. Esse ordenamento é possível devido à interação repulsiva dos vórtices. Em condições reais os defeitos e/ou impurezas presentes no material ancoram os vórtices, dificultando seu movimento e produzindo desordem na rede.

Em 1967 Essemann e Trauble [13] fizeram a primeira imagem da rede de vórtices por Microscopia Eletrônica (Figura 6). A imagem foi realizada em uma amostra de Pb-at4%In em temperatura de 1,1 K. A rede de vórtices foi observada com a ajuda de pequenas partículas de cobalto que foram dispersas na superfície da amostra.

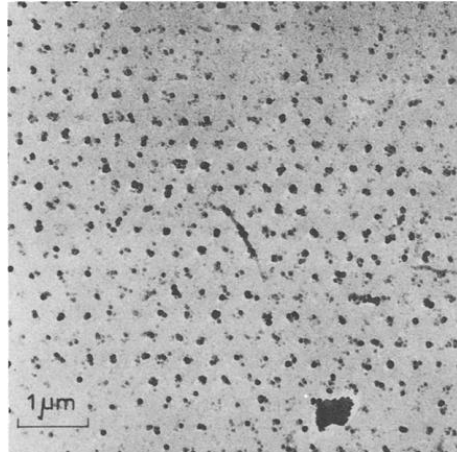


Figura 6: Primeira imagem da rede de vórtice realizada em uma amostra de Pb-at4%In [13].

Na atualidade existem outras técnicas que permitem observar a rede de vórtices em supercondutores, tais como micro-sensoriamento Hall (SHPM), microscopia de força magnética (MFM), magneto ótica (MOI) e microscopia de corrente de tunelamento (STM).

2.4.1 Movimento e ancoragem de vórtices

Ao aplicar uma corrente a um material supercondutor os vórtices podem se mover devido à força de Lorentz. O movimento dos vórtices provoca dissipação de energia no material levando à destruição da supercondutividade. Essa dissipação de energia é uma barreira para aplicação dos materiais supercondutores. Para evitar esse movimento procura-se aprisionar os vórtices em centros de ancoragem/aprisionamento.

Quando os vórtices são ancorados, existe uma força associada, chamada força de ancoragem ou força de *pinning*, F_p . Quando uma corrente de transporte é aplicada ao supercondutor, a força de Lorentz, F_L , atua no sentido de desancorar os vórtices, induzindo um movimento coletivo dos mesmos.

Quando a força de ancoragem é predominante existe um movimento lento dos vórtices abaixo da temperatura crítica chamado *flux creep* [9]. No regime de *flux creep* os vórtices saltam de um centro de aprisionamento para outro, em resposta a gradientes de densidade de fluxo. Se a força de Lorentz é predominante existe um movimento rápido dos vórtices chamado *flux flow* [9]. Neste caso o movimento é dissipativo e depende do meio. Em alguns casos ocorre uma invasão abrupta de vórtices no material, esse efeito é chamado de *flux jump*. Se todos os vórtices estiverem ancorados implica que a densidade de vórtices e de centros de ancoragem são iguais, neste caso tem-se o efeito *matching* [9].

A ancoragem de vórtices pode ser por defeitos presentes no material, tais como, contorno de grão e discordâncias [14]. Ou, pela inserção de centros de ancoragem, tais como: *antidot* [15,16], *blind hole* [17,18], defeito estrutural e centros de ancoragem magnéticos [19–21]. Estes centros de ancoragem acrescentados ao material têm como objetivo fixar os vórtices que penetram no material supercondutor e, assim, evitar a dissipação de energia. Um dos efeitos da ancoragem de vórtices é o Efeito Meissner Paramagnético que será discutido na próxima seção.

2.5 Efeito Meissner Paramagnético

O sinal da magnetização DC positivo abaixo da temperatura de transição supercondutora é chamado de efeito Meissner paramagnético (do inglês PME). Esse efeito pode ser visualizado na Figura 7 para a amostra texturizada de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. A medida foi realizada no modo FCC (*Field Cooled Cooling*) com campos aplicados de 0,05 kOe a 50 kOe. Neste caso a resposta paramagnética aparece quando o campo magnético aplicado é 0,5 kOe e aumenta com o aumento do campo aplicado [22].

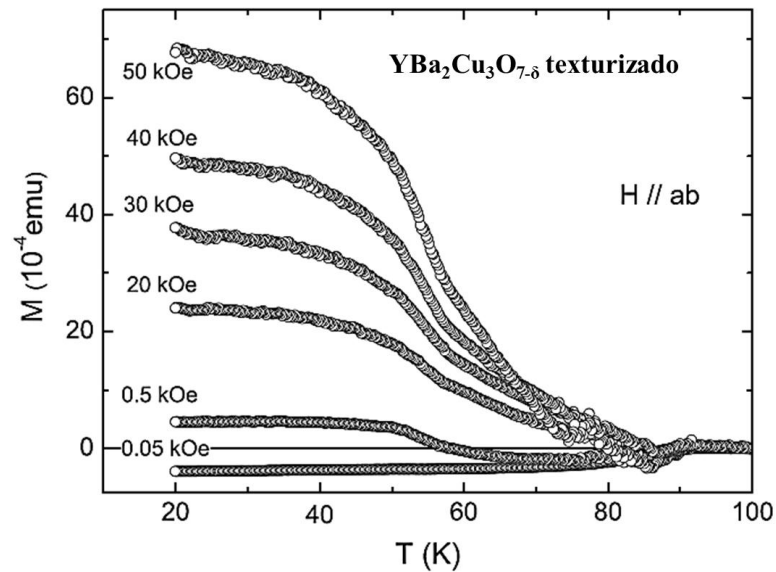


Figura 7: Magnetização FCC para a amostra texturizada de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ nos campos citados aplicados ao longo do plano ab [22].

As primeiras observações deste efeito foram realizadas em amostras de supercondutores de alta temperatura, tais como $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ [23,24], mas foi também observado em supercondutores de baixa temperatura, como o Nb [25] e o Al [26]. A explicação do PME tem levado ao aparecimento de várias teorias, dentre elas orbital *glass* [27], geometria da amostra e efeitos de superfície [26] e a compressão de fluxo [28].

A teoria que envolve a compressão de fluxo pode ser descrita por duas aproximações. A primeira foi proposta por Koshelev e Larkin [28], segundo eles o aprisionamento do fluxo é resultado das condições de resfriamento da amostra, pois o resfriamento da amostra ocorre de forma não homogênea. A segunda, proposta por Moshchalkov e colaboradores [29], define que o PME surge como resultado do aprisionamento do fluxo dentro de um estado de vórtice gigante, com número quântico orbital (L) fixo.

Assim, Segundo Moshchalkov e Fritzsche [30] o PME é provocado pela presença de vórtices dentro da amostra, uma vez que, uma corrente supercondutora flui em torno do vórtice para blindar o seu campo interno da amostra bulk, e por outro lado, uma segunda corrente flui em torno da amostra para impedir que o campo externo penetre na amostra. Essas duas correntes de blindagem fluem em direções opostas e contribuem com o sinal oposto para o momento magnético (ou magnetização) da amostra. Portanto, dependendo do campo, a magnetização total pode ser negativa (diamagnética) ou positiva (paramagnética).

Partindo da perspectiva de que o PME é provocado pela presença de vórtices dentro da amostra Dias e colaboradores [31] mostram que o PME em altos campos em uma amostra

texturizada de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ é resultado da ancoragem de vórtices pelas partículas de Y_2BaCuO_5 dispersas na amostra. Em outro trabalho Xing e colaboradores [32] mostram que é possível obter um fenômeno de chaveamento controlado entre o PME e o efeito Meissner diamagnético com o mesmo campo magnético externo em um nanocompósito supercondutor/ferromagnético. A amostra híbrida consiste de um filme de Pb de 100 nm com nanopartículas de Co homogeneamente distribuídas.

Assim pode-se observar que além das demais contribuições o PEM é resultado da ancoragem de vórtices por centros de ancoragem presentes no material.

3. FILMES FINOS E MULTICAMADAS

As alterações nas propriedades quando os materiais supercondutores têm seu tamanho reduzido será tema deste capítulo. Inicialmente serão abordadas as alterações na temperatura crítica, no campo crítico superior, na ancoragem de vórtices e no fator de desmagnetização de filmes individuais. Posteriormente serão descritas as alterações que ocorrem quando estes materiais são confeccionados em forma de empilhamento sucessivo de filmes, multicamadas.

3.1 Filmes Finos Supercondutores

A pesquisa em filmes finos supercondutores sempre foi alvo de atenção em supercondutividade, isto se deve ao fato de que as propriedades supercondutoras de filmes finos diferem das propriedades dos materiais volumétricos dos quais eles são feitos. Essa miniaturização pode induzir modificações nas propriedades de um supercondutor quando as suas dimensões efetivas tornam-se menores do que as escalas de comprimentos característicos. As propriedades dos filmes supercondutores estão diretamente relacionadas com a espessura do filme, d . Quando a espessura se torna menor que o comprimento de coerência ξ o supercondutor é considerado bidimensional [33] e, se a espessura for muito menor que o comprimento de penetração as correntes de blindagem serão limitadas pela espessura. Além da espessura a morfologia do filme também influencia nas propriedades supercondutoras.

Essas mudanças no tamanho do supercondutor podem induzir alteração em algumas de suas propriedades, tais como temperatura crítica, campo crítico, fator de desmagnetização e dinâmica de vórtices. Essas são algumas das propriedades dos filmes finos que serão abordadas neste trabalho.

3.1.1 Temperatura crítica

As mudanças na temperatura crítica de filmes finos supercondutores são objeto de estudo em muitos trabalhos. Esses estudos mostram que a temperatura crítica sofre influência principalmente da morfologia e da espessura dos filmes.

No que diz respeito a morfologia, sabe-se que esta é dependente dos processos de preparação da amostra. Filmes finos supercondutores podem ser preparados por diversas técnicas dentre elas evaporação, *sputtering* e epitaxia de feixe molecular (MBE). Na técnica de *sputtering* já é conhecido que a qualidade dos filmes é determinada principalmente por três parâmetros, a temperatura do substrato, a taxa de crescimento e a pressão do gás inerte. Por exemplo, Surges e colaboradores [34] mostraram que há uma modificação na microestrutura do Nb em amostras depositadas com diferentes temperaturas do substrato. Eles mostraram que com o aumento da temperatura há uma diminuição no tamanho de grão do filme e que essas modificações no tamanho de grão influenciam na temperatura de transição dos filmes. Hazra e colaboradores [35] modificaram o tamanho de grão em filmes de Nb por meio de modificações na pressão de Ar durante a deposição. Eles também mostraram que a temperatura crítica do supercondutor sofre modificações dependentes do tamanho de grão (Figura 8).

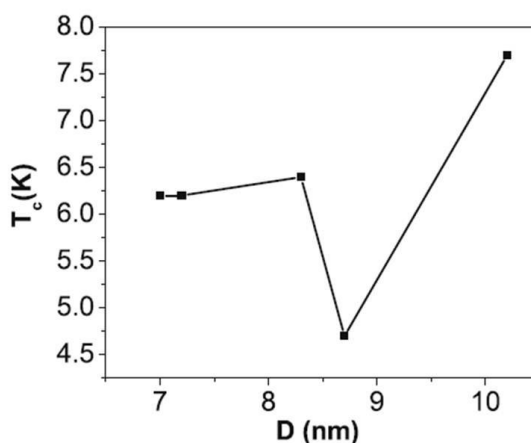


Figura 8: Dependência da temperatura crítica dos filmes de Nb com o tamanho de grão (D) [35].

Bose e colaboradores [36] reportaram que a temperatura crítica de nanofilmes de Pb tem uma pequena redução, em comparação com o material volumétrico, com a redução do tamanho de grão. Essa redução corresponde a 13% para grãos com tamanhos entre 14 e 7 nm,

sendo que em nanofilmes com grãos menores que 7 nm o Pb perde abruptamente sua supercondutividade. Dois mecanismos que podem explicar essa relação entre a temperatura de transição e o tamanho de grão são o acoplamento elétron-fônon e o efeito quântico devido ao tamanho (QSE). Segundo os autores, supercondutores com fraco acoplamento elétron-fônon, tais como In, Al e Sn, têm sua temperatura de transição aumentada quando diminui o tamanho de grão; um acoplamento intermediário como o do Nb tende a diminuir a temperatura de transição e supercondutores com forte acoplamento como o Pb quase não apresenta mudanças na temperatura crítica.

A interação elétron-fônon é proveniente da relação superfície/volume devido à redução do tamanho. Uma vez que os átomos da superfície tem um número de coordenação menor do que os átomos do material volumétrico, fônons superficiais são menos intensos do que fônons do material volumétrico. Isto leva a uma redução global nas frequências de fônons, resultando em um aumento no acoplamento elétron-fônon e uma maior temperatura crítica. Por outro lado, o efeito quântico devido ao tamanho (QSE) aumenta a partir da discretização dos níveis de energia eletrônica levando a uma diminuição da densidade de estados efetivos no nível de Fermi. O QSE leva a uma redução da temperatura crítica

As mudanças na temperatura crítica com a variação da espessura também podem ser explicadas por meio do QSE e da interação elétron-fônon. Em alguns casos a dependência da temperatura crítica com a espessura do filme é oscilatória, isto é característico do QSE [37]. Alguns trabalhos que mostram este efeito são os de Orr e colaboradores [38] que estudaram filmes de Sn e os de Guo e colaboradores [33] que estudaram filmes ultrafinos de Pb. Em outras situações existe uma dependência entre espessura e temperatura crítica, como é o caso do Nb em que a temperatura crítica aumenta com o aumento da espessura, como mostrado nos trabalhos de Il'in e colaboradores [39] e Gubin e colaboradores [40]. Esse comportamento é apresentado na Figura 9, onde é possível observar que a partir de 20 nm o filme de Nb já apresenta temperatura de transição semelhante à do material volumétrico.

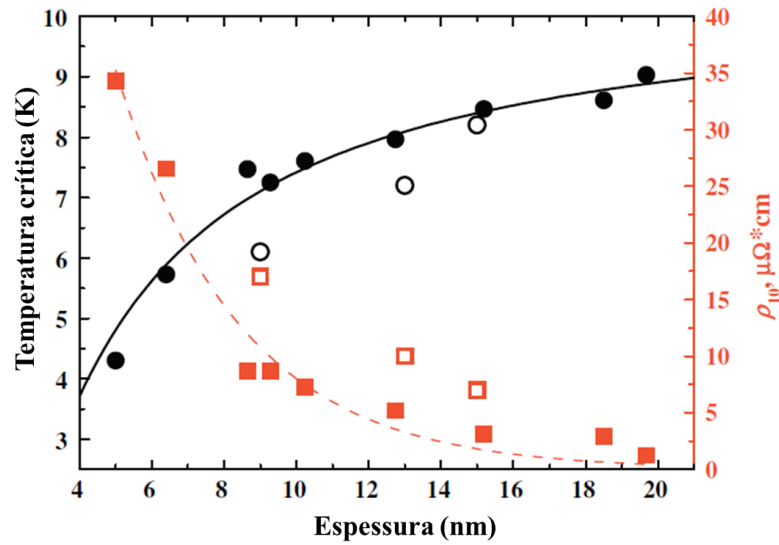


Figura 9: Dependência da temperatura crítica (círculos) e da resistividade em 10 K (quadrados) em função da espessura de filmes de Nb (os símbolos fechados são valores dos filmes como depositados, os símbolos abertos são valores medidos após modelação de pontes) [39].

3.1.2 Campo crítico superior

Outra propriedade do supercondutor que é afetada com a redução do tamanho do material é o campo crítico superior. Quando o campo magnético é aplicado perpendicular à superfície de um filme, ele penetra no material formando o estado misto. Assim a transição do estado normal para o estado supercondutor acontece em um determinado campo, chamado campo crítico $H_C^\perp$, dado por:

$$H_C^\perp = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2}. \quad (5)$$

Essa expressão é idêntica à expressão do campo crítico H_{C2} para supercondutores volumétricos. Para filmes muito finos esta equação vale tanto para supercondutores do tipo I quanto do tipo II [41].

A dependência angular do campo crítico H_C pode ser obtida pela seguinte relação [11]:

$$\left| \frac{H_C(\theta) \sin \theta}{H_C^\perp} \right| + \left(\frac{H_C(\theta) \cos \theta}{H_C^\parallel} \right)^2 = 1, \quad (6)$$

onde $H_C^\parallel$ representa o campo crítico paralelo à superfície do filme. E, a dependência angular do campo crítico superior H_{C2} pode ser obtida a partir da solução da equação de Ginzburg-Landau bidimensional, que é dada por [11]:

$$\left| \frac{H_{C2}(\theta) \sin \theta}{H_{C2}^\perp} \right| + \left(\frac{H_{C2}(\theta) \cos \theta}{H_{C2}^\parallel} \right)^2 = 1, \quad (7)$$

onde

$$H_{C2}^\perp = \frac{\phi_0}{2\pi \xi^\parallel{}^2}, \quad (8)$$

e

$$H_{C2}^\parallel = \frac{\sqrt{12}\phi_0}{2\pi d \xi^\parallel}, \quad (9)$$

onde d é a espessura do filme. Para a orientação paralela do campo magnético, vórtices podem não aparecer no filme se $d \ll \xi$, portanto o parâmetro de ordem é considerado constante sobre todo o filme [42]. A Equação 8 possui a mesma forma dos supercondutores volumétricos que têm dependência linear em $(1 - T/T_C)$, pois $\xi \propto (1 - T/T_C)^{-1/2}$, e a Equação 9 tem dependência em $(1 - T/T_C)^{1/2}$, que é característico de supercondutores 2D [43].

Em seu trabalho Kozuca [44] e colaboradores mostram as propriedades bidimensionais de uma amostra SrTiO_3 dopado com Nb, (NSTO), entre duas camadas isolantes de SrTiO_3 . A Figura 10(a) mostra dependência do campo crítico superior com a temperatura para campos aplicados paralelo e perpendicular ao plano da amostra de NSTO e a Figura 10(b) mostra a completa dependência angular do campo crítico superior. Como esperado, um pico na direção paralela, $\theta = 0^\circ$, é mostrado.

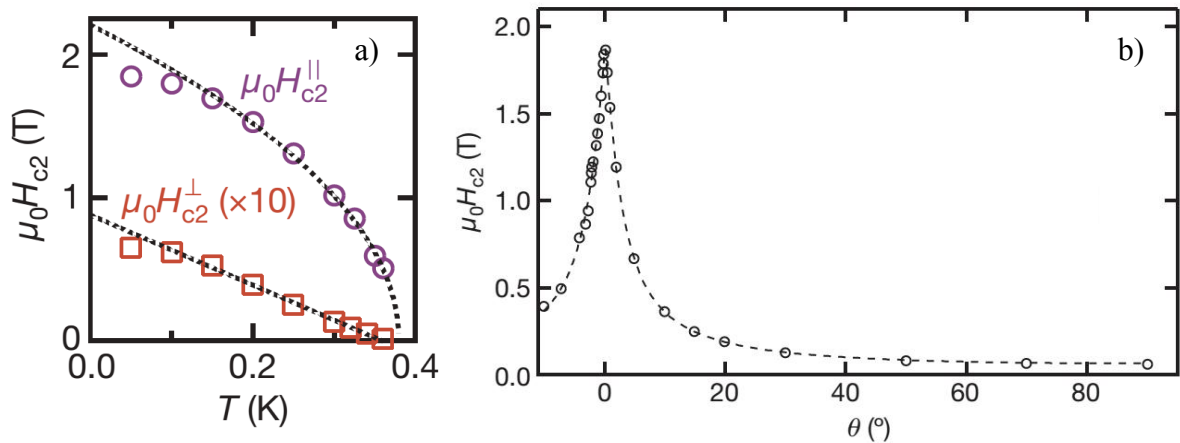


Figura 10: a) Campo crítico superior em função da temperatura para a amostra de NSTO, para campo magnético aplicado perpendicular ao plano da amostra (quadrados, os dados foram multiplicados por 10 para melhor visualização) e paralelo ao plano (círculos). As linhas pontilhadas são os ajustes com a teoria de Ginzburg-Landau linearizada. b) Completa dependência angular do campo crítico superior, a linha pontilhada é o ajuste com a equação de dependência angular [44].

Resultado semelhante foi apresentado por Ueno e colaboradores [45] para um monocristal de SrTiO_3 no qual a supercondutividade, induzida por campo elétrico, é bidimensional.

Alguns trabalhos mostram que o tamanho de grão e a espessura dos filmes influenciam no comportamento de H_{c2} . Bose e colaboradores [46], em um estudo com vários filmes de nióbio com diferentes tamanhos de grão, observaram um aumento de 2,5 vezes no valor de H_{c2} para filmes com tamanho de grão variando de 60 nm a 20 nm, também observaram que, para grãos menores que 20 nm, o valor de H_{c2} diminui. Dobrovolskiy e colaboradores [1] observaram um aumento em H_{c2} para filmes de Nb no limite sujo quando comparados com filmes de Nb no limite limpo. Em outro trabalho, Bose e colaboradores [36] mostram o aumento de H_{c2} com a redução do tamanho de partículas, de 60 nm para 7 nm, para filmes de chumbo nanocristalino de 200 nm de espessura.

3.1.3 Ancoragem de vórtices

Para filmes finos supercondutores contínuos, com espessura d muito menor que o comprimento de penetração, $d \ll \lambda$, as correntes de blindagem supercondutoras são limitadas pela espessura do filme. Se o campo magnético é perpendicular ao filme a rede de vórtices é quase unidimensional. Das dimensões do filme resulta um comprimento de penetração efetivo dado por [47]:

$$\Lambda = \frac{2\lambda^2}{d}. \quad (10)$$

A espessura reduzida dos filmes tem consequências para os vórtices individuais. O campo local ao redor de um único vórtice em um filme fino é menos efetivamente blindado em grandes distâncias. Em vez da diminuição exponencial do campo magnético local para grandes distâncias, a partir do núcleo de vórtice como em supercondutores volumétricos, em filmes finos o campo local ao redor do vórtice diminui com $1/r^3$. A energia repulsiva entre os vórtices diminui com $1/r$, similar à repulsão Coulombiana entre duas cargas elétricas. Isto significa que a interação repulsiva entre vórtices em filmes finos é de mais longo alcance que no material volumétrico [30].

Os vórtices nos supercondutores podem ser ancorados por vários tipos de centros de ancoragem. Os centros de ancoragem magnéticos induzem efeitos maiores que centros de ancoragem não magnéticos [19]. A interação entre os centros de ancoragem magnéticos e o filme supercondutor se dá por meio da interação entre as correntes do supercondutor (vórtices) e o campo magnético gerado pelos centros de ancoragem [48].

A ancoragem de vórtices em filmes finos por meio de centros de ancoragem magnéticos tem sido bastante estudada. Hallet e colaboradores [49] estudaram os efeitos de *matching* causados por nanofios magnéticos. Um arranjo denso de nanofios ferromagnéticos foi usado para criar os centros de ancoragem periódicos em um filme fino de NbN, onde efeitos de *matching* foram observados até 3 T. Trezza e colaboradores [50] mostram que a campo crítico de filme de Nb com centro de ancoragem ferromagnético (Ni) aumenta em comparação a um filme semelhante sem os centros de ancoragem. O resultado pode ser observado na Figura 11.

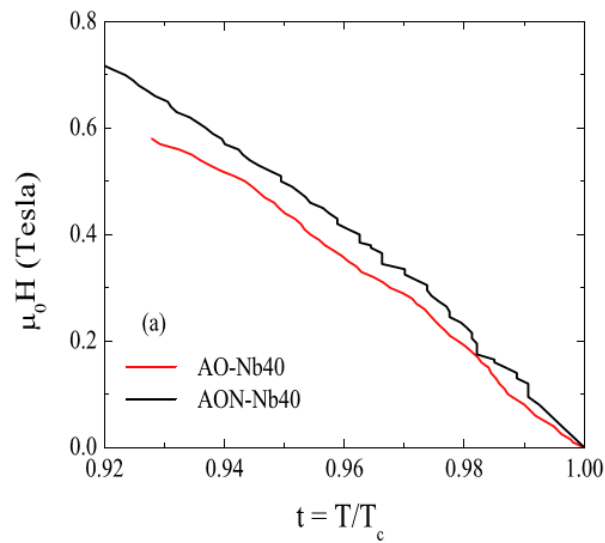


Figura 11: Campo crítico superior perpendicular como função da temperatura reduzida para filme de nióbio de 40 nm, depositado em um arranjo de nanofios de níquel (linha preta) e em um substrato de alumina (linha vermelha) [50].

Ye e colaboradores [51] mostraram que a temperatura crítica de um filme da liga Pb/Bi, na presença de centros de ancoragem ferromagnéticos (Co), diminui em comparação ao mesmo filme depositado em um substrato de vidro (Figura 12); por outro lado a corrente crítica aumenta. A redução na temperatura crítica é atribuída à interação dos vórtices do supercondutor com o momento magnético dos nanofios de cobalto. O aumento da corrente crítica foi atribuído ao confinamento do fluxo magnético pelos nanofios.

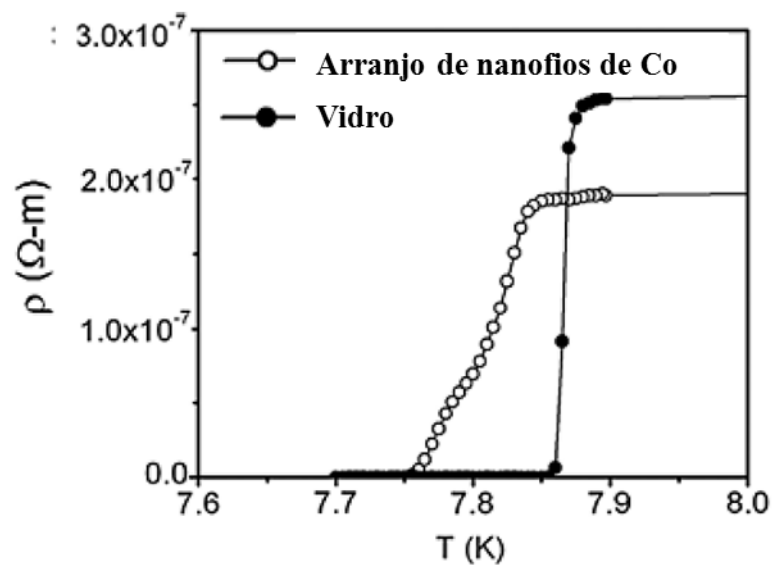


Figura 12: Resistividade em função da temperatura para filmes de Pb/Bi depositados sobre um arranjo de nanofios de Co (círculos abertos) e em substrato de vidro (círculos fechados) [51].

As propriedades dos filmes supercondutores são afetadas pelo aumento do campo magnético na presença de centros de ancoragem magnéticos. Isto se deve aos efeitos de proximidades e ao momento magnético do centro de ancoragem magnético. Se o momento magnético do centro de ancoragem for muito grande, vórtices podem ser induzidos no filme supercondutor [48].

3.1.4 Fator de desmagnetização

A palavra desmagnetização foi originalmente adotada para uso em materiais ferromagnéticos. Ela é aplicada em supercondutores com consequências opostas ao que foi utilizado em materiais ferromagnéticos, mas é igualmente importante considerar, devido ao fato que efeitos de magnetização e desmagnetização são muito intensos, em supercondutores [6].

Na Figura 13 está representado um elipsoide magnetizado por um campo magnético aplicado da direita para a esquerda. Como resposta ao campo aplicado surge no elipsoide um polo norte à esquerda e um polo sul à direita. Por definição as linhas de campo “irradiam” do polo norte para polo sul resultando no padrão de linhas de campo mostrado na figura. Observa-se na figura que o campo dentro da amostra aponta da esquerda para a direita, ou seja, aponta na direção oposta ao campo aplicado. Este campo tende a desmagnetizar a amostra e então é chamado de campo de desmagnetização [52].

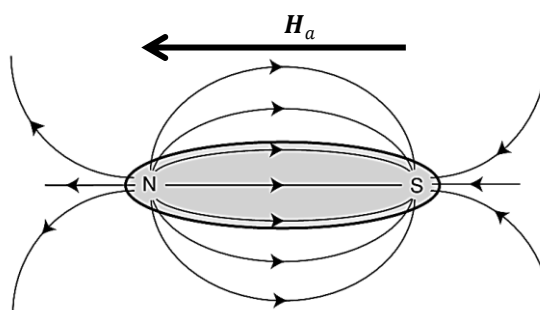


Figura 13: Representação do campo magnético ao redor de um elipsoide prolato [52].

Efeito semelhante corre em um supercondutor, pois quando um campo magnético H_a é aplicado a um supercondutor as correntes de blindagem que aparecem próximo à superfície

criam um campo adicional na amostra. Este é chamado de campo de desmagnetização $\mathbf{H}_d$. Assim, o campo efetivo no interior da amostra é dado por:

$$\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H}_a - \mathbf{H}_d, \quad (11)$$

Considerando que o campo de desmagnetização é uniforme em elipsoide de revolução, o campo de desmagnetização é dado por:

$$\mathbf{H}_d = n\mathbf{M}, \quad (12)$$

onde n é o fator de desmagnetização e $\mathbf{M}$ é magnetização da amostra. O fator de desmagnetização depende da forma da amostra e satisfaz a condição de normalização $n_x + n_y + n_z = 1$, onde n_x , n_y e n_z são os fatores de desmagnetização nas três direções da amostra. O fator de desmagnetização será maior na direção de menor dimensão e vice-versa. Logo, considerando um filme fino, o fator de desmagnetização será maior na direção perpendicular ao plano do filme e menor na direção paralela ao plano.

Para um supercondutor no estado Meissner $\mathbf{M} = -\mathbf{H}_{eff}$, assim [6]:

$$\mathbf{H}_{eff} = \frac{1}{1-n} \mathbf{H}_a. \quad (13)$$

Considerando um elipsoide com dimensões $a = b \neq c$ ao longo dos eixos x , y e z , respectivamente, tem-se as diferentes expressões para o fator de desmagnetização: oblato ($c < a$) e prolato ($c > a$) [9].

Para o elipsoide oblato,

$$n_z = \frac{1}{\epsilon^2} - \frac{(1-\epsilon^2)^{1/2}}{\epsilon^3} \sin^{-1} \epsilon, \quad (14)$$

onde a excentricidade, ϵ , é dada por:

$$\epsilon = \left[1 - \left(\frac{c}{a} \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (15)$$

Para o elipsoide prolato,

$$n_{x,y} = \frac{1-\epsilon^2}{\epsilon^2} \left[\frac{1}{2\epsilon} \ln \left(\frac{1+\epsilon}{1-\epsilon} \right) - 1 \right], \quad (16)$$

onde a excentricidade prolata é dada por:

$$\epsilon = \left[1 - \left(\frac{a}{c} \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (17)$$

No caso de filmes finos é considerado o caso limite onde $c \ll a$. Logo,

$$n_z \sim 1 - \frac{\pi c}{2a} \quad \text{e} \quad n_{x,y} \sim \frac{\pi c}{4a} \quad (18)$$

Assim o campo magnético efetivo assume a forma:

$$\mathbf{H}_{eff} = \frac{2a}{\pi c} H \hat{z}. \quad (19)$$

A magnitude do fator de desmagnetização, na direção z , de um filme é muito próxima de 1, isso faz com que o campo efetivo no interior do supercondutor atinja valores entre 10^4 e 10^5 Oe, dependendo da relação entre dimensões laterais e espessura da amostra [53].

3.2 Multicamadas

Estruturas de multicamadas supercondutoras tipicamente são compostas por duas ou mais camadas de diferentes materiais. Uma das camadas é um material supercondutor (S) e a segunda camada pode ser um isolante (I), um metal normal (N), um ferromagneto (F) ou outro supercondutor (S'). As propriedades dos materiais em multicamadas podem ser diferentes de quando estes estão isolados. Em geral, os efeitos de proximidade e tunelamento podem influenciar consideravelmente as propriedades das multicamadas supercondutoras [54]. As características e alguns trabalhos que envolvem as diferentes multicamadas e suas principais mudanças de comportamento serão abordados nas próximas seções.

3.2.1 Supercondutor/Isolante (S/I)

Os sistemas S/I são largamente estudados nas chamadas junções Josephson. Essas junções são construídas por dois supercondutores separados por uma fina barreira de material isolante, S/I/S. Tais junções também podem ser constituídas por supercondutores separados por metal normal (S/N/S) ou ferromagnetos (S/F/S). Também são consideradas junções Josephson as interações intergranulares em supercondutores granulares, tais com supercondutores de alta temperatura [55].

Existem dois tipos de acoplamento Josephson entre as camadas supercondutoras em um sistema multicamadas: o tunelamento dos pares de Cooper e o acoplamento por efeito de proximidade [54]. No sistema S/I o tunelamento tem maior relevância. A junção Josephson foi proposta teoricamente em 1962 por Josephson [56], ele previu que seria possível ocorrer o tunelamento de pares de Cooper entre dois supercondutores separados por uma fina camada

isolante, na ausência de uma voltagem externa. Esse fenômeno é conhecido como efeito Josephson.

A principal característica desse tipo de estrutura é que quando uma voltagem constante, V , é aplicada em uma junção Josephson, aparece uma corrente que oscila em uma frequência, ν , dada por:

$$\nu = \frac{2e}{h}V \quad (20)$$

Onde h é a constante de Planck e e é a carga do elétron.

A demonstração experimental do efeito Josephson foi realizada em 1963 por Anderson e Rowell [57]. Eles observaram o efeito em uma bicamada dos supercondutores Sn e Pb, na qual existia uma fina barreira de óxido de estanho entre as camadas.

As propriedades supercondutoras desse tipo de interação S/I têm sido estudadas por alguns autores, dentre eles Ruggiero e colaboradores [58] que apresentaram as modificações na temperatura crítica e no campo crítico em multicamadas de Nb/Ge e observaram que o campo crítico aumenta com o aumento da espessura das camadas de Nb. Neerink e colaboradores [59] estudaram a dependência do campo crítico paralelo em multicamadas de Pb/Ge e observaram que o aumento da espessura da camada de Ge leva a uma redução do campo crítico da amostra.

3.2.2 Supercondutor/Metal Normal (S/N)

No caso da interface S/N os pares de Cooper podem penetrar o metal e os elétrons do metal podem penetrar no supercondutor [60]. Portanto, supercondutividade pode ser induzida no metal normal, este fenômeno é chamado de efeito de proximidade. Simultaneamente, a dissipação dos pares de Cooper perto do metal normal enfraquece a supercondutividade nesta região, esse efeito é chamado de efeito de proximidade inverso (EPI) [61]. O EPI resulta na redução da temperatura de transição em um filme fino supercondutor em contato com um metal.

Essencialmente o que ocorre é que a supercondutividade se propaga no metal sobre uma distância que é da ordem de ξ_N , o comprimento de coerência do metal, enquanto o parâmetro de ordem no lado supercondutor é reduzido sobre uma distância ξ_S , o comprimento

de coerência do supercondutor. Assim, se a espessura da camada supercondutora é menor que ξ_S , a supercondutividade é completamente suprimida [62].

Muitos trabalhos têm estudados efeitos da proximidade entre supercondutores e metais normais. Um dos efeitos é a mudança de dimensão que ocorre no campo crítico superior em multicamadas S/N e S/S'; essa mudança foi proposta teoricamente por Takahashi e Tachiki [63]. Posteriormente, Koperdraad e colaboradores [64,65] utilizaram a teoria de Takahashi e Tachiki para investigar o campo crítico superior como função da temperatura e comparar com sistemas reais de V/Ag, Nb/Cu e Nb/Ta. Attanasio e colaboradores [66] mostraram em seu trabalho a relação entre a temperatura e o campo crítico da multicamada de Nb/CuMn em função da espessura da camada de CuMn. Com a redução da camada de CuMn o campo crítico paralelo exibe um comportamento 3D enquanto que com a variação angular apresenta uma mudança de 3D para 2D. Em outro trabalho deste grupo [67] foram mostrados resultados semelhantes para multicamadas de Nb/Pd.

Além da mudança dimensional do campo crítico superior, outra propriedade que tem sido estudada em multicamadas S/N é a transparência de interface. Este fenômeno está relacionado à resistência de fronteira que os elétrons encontram em uma interface e isto reduz o fluxo de pares de Cooper da camada supercondutora para a camada não supercondutora [68]. Kushnir e colaboradores [62] estudaram a transparência de interface em multicamada de Nb/Cu e tricamada Cu/Nb/Cu, através da dependência da temperatura crítica com a variação da espessura da camada de Nb. Recentemente, em outro trabalho do grupo, Kushnir e colaboradores [68] propuseram um método experimental para calcular a resistência de interface, de interfaces supercondutora/não supercondutora, por meio da medida da temperatura crítica como função da espessura da camada supercondutora.

3.2.3 Supercondutor/Ferromagnético (S/F)

Enquanto na interação S/N o parâmetro de ordem decai monotonicamente ao penetrar a região normal, na interação S/F os spins dos elétrons dos pares de Cooper no supercondutor são orientados pelo campo de troca do material ferromagnético. Logo, os elétrons com spin-up diminuem sua energia em um valor h , enquanto que a energia dos elétrons com spin-down aumenta no mesmo valor. Isso dá origem ao decaimento oscilatório do parâmetro de ordem

supercondutor na presença de um ferromagneto. O comportamento do parâmetro de ordem na interface S/N e S/F pode ser visto na Figura 14.

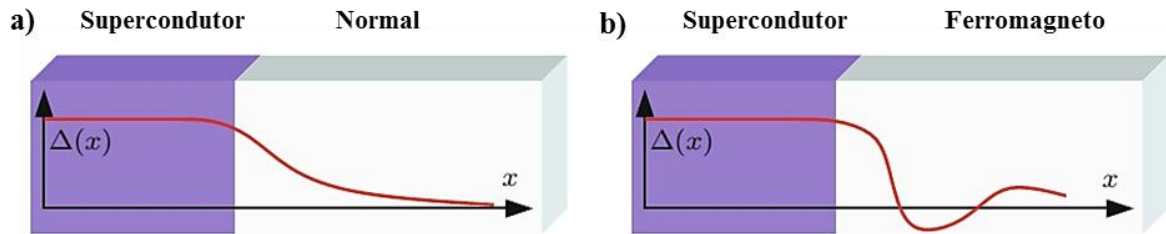


Figura 14: Característica da dependência espacial do parâmetro de ordem supercondutor em uma interação a) supercondutor/normal e b) supercondutor/ferromagneto [69].

O comportamento oscilatório do parâmetro de ordem supercondutor em ferromagnetos resulta em uma dependência não monotônica da temperatura de transição supercondutora com a espessura da camada do ferromagneto [61]. Essa dependência foi prevista teoricamente [70] e, subsequentemente, observada experimentalmente em multicamadas de Nb/Gd [71], Nb/CuMn [72], Nb/Co e V/Co [73], bem como em bicamadas Nb/Ni [74] e em tricamadas de Fe/V/Fe [75], Fe/Nb/Fe [76], Nb[Fe/Co] [77] e Fe/Pb/Fe [78].

Alguns trabalhos reportam que a corrente crítica também apresenta comportamento oscilatório em função da espessura da camada do ferromagneto. Kontos e colaboradores [79] observaram oscilações da corrente em junções de Nb/Al/Al₂O₃/Nb e Blum e colaboradores [80] reportaram comportamento semelhante em junções de Nb/Cu/Ni/Cu/Nb. Recentemente Boden e colaboradores [81] identificaram múltiplas oscilações na densidade de estados da multicamada Cu/Ni/Cu/Nb/Au em função da espessura da camada de Ni.

O efeito de proximidade inverso (o magneto induz magnetização no supercondutor) foi reportado para bicamadas de Pb/Ni e Al/(CoPd) [82].

3.2.4 Supercondutor/Supercondutor (S/S')

A interação entre dois supercondutores diferentes, onde as temperaturas críticas e os gaps de energia são diferentes, resultará também na influência do efeito de proximidade. As propriedades dos dois supercondutores sofrerão mudanças nas vizinhanças da junção. Se a espessura de ambos os supercondutores for superior a 10 vezes o valor do comprimento de

coerência ($10\xi_{S(S')}$), as regiões distantes da interface se comportam como materiais volumétricos [83]. A região em torno da interface S/S' apresenta propriedades diferentes das duas regiões volumétricas.

Um das principais linhas de investigação em multicamadas é a mudança de dimensão do campo crítico paralelo $H_{C2}^{\parallel}$. Essa mudança é provocada pela variação do comprimento de coerência em função da temperatura [84]. Uma das teorias que envolvem a mudança de dimensão foi proposta por Takahashi e Tachiki [2]. A mudança de dimensão de $H_{C2}^{\parallel}$ ocorre em certa temperatura T^* , para $T^* < T < T_C$ a dimensão é 3D e para $T < T^*$ a dimensão é 2D, com T diminuindo [85]. A mudança de dimensão em $H_{C2}^{\parallel}$ foi observada em multicamadas de Nb/Ta [86], Nb/Nb_{0,6}Ti_{0,4} [43], Nb/NbZr [84], Nb/Nb_{0,5}Zr_{0,5} [87] e NbTi/Nb [88].

Também, o mecanismo de ancoragem de vórtices é bastante estudado em multicamadas supercondutoras, pois estes são considerados como tendo grandes centros de ancoragem devido à interface entre as camadas supercondutoras possuir características dos diferentes supercondutores. Nesses sistemas a estrutura em camadas desempenha um papel importante para a ancoragem de vórtices, pois a variação espacial do parâmetro de ordem das camadas supercondutoras oscila perpendicularmente à estrutura periódica [88].

Em multicamadas, a densidade de força de ancoragem $F_P^{\perp}$ que age na direção perpendicular às camadas é maior que a densidade longitudinal $F_P^{\parallel}$. Nos sistemas S/N, as camadas N funcionam como centros atrativos de vórtices. Os vórtices são estabilizados em N, e a diferença de potencial entre as camadas S e N é considerada como sendo a principal origem do aumento de $F_P^{\perp}$. Em contraste, nos sistemas S/S' como NbTi/Nb em que as camadas S e S' possuem quase a mesma energia de condensação, a principal origem de $F_P^{\perp}$ vem do termo de energia cinética da energia livre de Ginzburg-Landau entre as duas camadas supercondutoras, que estabiliza os vórtices na camada supercondutora de menor ξ_{GL} [85]. Nesse sistema NbTi/Nb as camadas de nióbio agem como centro repulsivo de ancoragem [85,88,89].

3.3 Dimensionalidade de multicamadas supercondutoras

A dimensionalidade das multicamadas supercondutoras pode ser determinada de acordo com a espessura das camadas individuais do sistema quando comparadas aos valores

de $\xi(T)$. Se a espessura da camada $d_S > \xi(T)$ então as camadas se comportam como o material volumétrico, logo, são tridimensionais. Neste caso, a estrutura em camadas somente introduz defeitos planares ao supercondutor que pode ser de interesse para o estudo de ancoragem de vórtices e corrente crítica quando há formação da rede de vórtices. Se a espessura da camada $d_S < \xi(T)$, então as camadas individuais são bidimensionais. O comportamento do sistema como um todo irá depender da força de acoplamento entre as camadas [54].

A dimensionalidade de uma multicamada supercondutora não é dependente da natureza detalhada do acoplamento, mas pode ser descrita macroscopicamente pelo comprimento de coerência na direção perpendicular às camadas, chamado ξ_z . Este comprimento de coerência perpendicular reflete o acoplamento entre as camadas supercondutoras. Se s é a modulação dos planos dada pela distância intercamadas, para $\xi_z \gg s$ o sistema irá se comportar como um supercondutor volumétrico anisotrópico. Para sistemas onde $\xi_z \leq s$ é esperado uma transição do comportamento tridimensional para o comportamento bidimensional como função da temperatura quando ξ_z se aproxima de s [54].

O campo crítico superior é uma das propriedades macroscópicas que reflete diretamente o tamanho do comprimento de coerência do material e a dimensionalidade do sistema supercondutor. As teorias que abordam essa transição dimensional serão descritas abaixo.

3.3.1 Modelo de Lawrence e Doniach

A mudança de dimensionalidade em multicamadas foi inicialmente descrita por Lawrence e Doniach [54]. Neste modelo, as multicamadas supercondutoras são consideradas como um empilhamento infinitamente fino e as camadas supercondutoras são separadas por vácuo ou material isolante. Ou seja, há um acoplamento Josephson entre as camadas supercondutoras.

Este modelo faz uma generalização da teoria de G-L 3D para o caso anisotrópico. A partir dessa anisotropia deve-se reescrever o comprimento de coerência, que é dado por [6,11]:

$$\xi_i^2(T) = \frac{\hbar^2}{2m_i\alpha(T)} \quad (21)$$

A anisotropia da rede tem uma influência direta na massa m_i e via massa se propaga para todas as outras grandezas direcionalmente distinguíveis [6].

Outra consequência está no campo crítico, agora os campos críticos superiores assumirão valores diferentes para cada direção:

$$H_{C2}^\perp = \frac{\phi_0}{2\pi \xi^\parallel{}^2} \quad (22)$$

e

$$H_{C2}^\parallel = \frac{\phi_0}{2\pi \xi^\parallel \xi^\perp} \quad (23)$$

Assim se $\xi^\parallel > \xi^\perp$ isto leva a $H_{C2}^\parallel > H_{C2}^\perp$. Lembrando que, no caso isotrópico $H_{C2} = \frac{\phi_0}{2\pi \xi^2}$.

Em $T < T^*$ o comportamento da multicamada passa de tridimensional para bidimensional. Lawrence e Doniach previram a existência de uma temperatura $T^* < T_c$ abaixo da qual o campo crítico superior paralelo às camadas é infinito [90]. O campo crítico paralelo superior assume a seguinte forma:

$$H_{C2}^\parallel = \frac{\phi_0}{2\pi s^2(1 - s^2/2 \xi_z(T)^2)^{1/2}} \left(\frac{m_{xy}}{m_z} \right) \quad (24)$$

Onde m_{xy} e m_z são as massas efetivas nas direções paralela e perpendicular, respectivamente. Esta equação leva à divergência do campo crítico em T^* definida por $\xi_z(T^*) = s/\sqrt{2}$. A dependência do campo crítico superior com a temperatura obtida do modelo de Lawrence Doniach [54] é mostrada na Figura 15.

Acima de T^* as multicamadas se comportam como um supercondutor anisotrópico 3D. Essa mudança de dimensão no campo crítico superior foi mostrada experimentalmente por Ruggiero e colaboradores [91] em amostras de Nb/Ge. A Figura 16 mostra esse resultado experimental. Para a amostra com $d_{Ge} = 7 \text{ \AA}$ o comportamento apresentado foi 3D, por outro lado, para amostras com $d_{Ge} = 50 \text{ \AA}$ o comportamento foi 2D e a amostra com $d_{Ge} = 35 \text{ \AA}$ apresentou um comportamento de mudança de dimensionalidade no campo crítico.

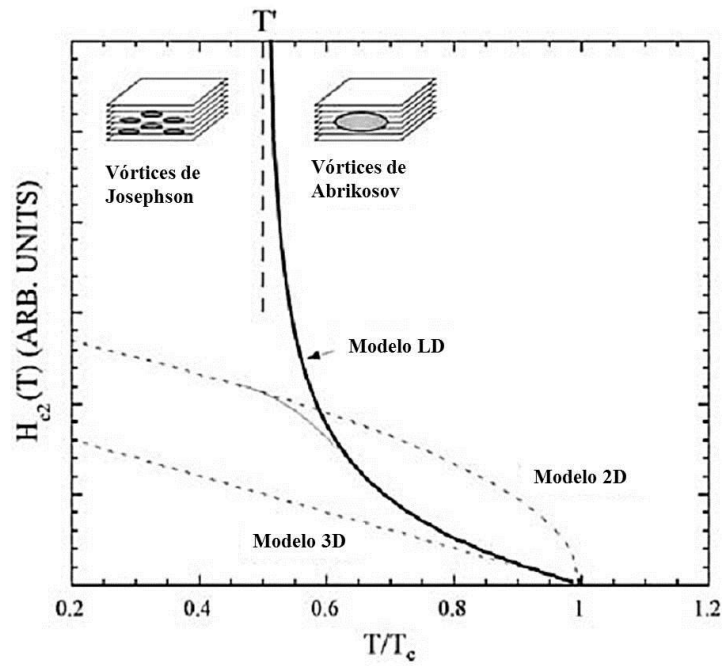


Figura 15: Curva do campo crítico superior em função da temperatura reduzida, modelo de Lawrence e Doniach. As linhas tracejadas mostram uma comparação com os modelos 3D e 2D [54].

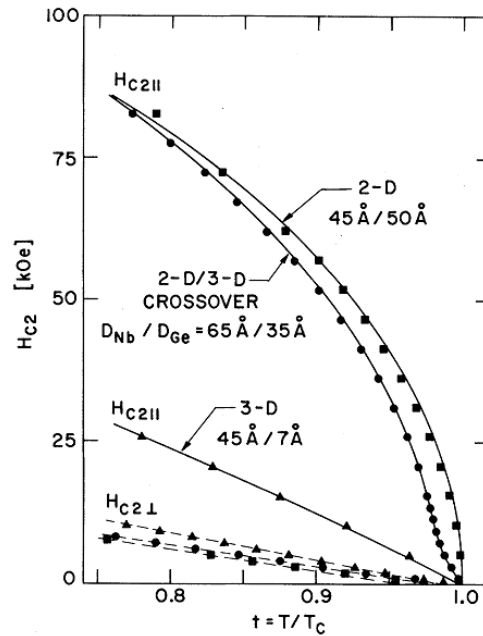


Figura 16: Campos críticos superiores próximos da temperatura crítica para multicamadas de Nb/Ge. Com o aumento da espessura das camadas de Ge sistema passa do comportamento 3D para o comportamento de mudança de dimensionalidade e finalmente para o comportamento 2D [91].

3.3.2 Modelo de Takahashi e Tachiki em multicamadas S/S'

Takahashi e Tachiki [2,63,92] examinaram o comportamento do campo crítico superior em multicamadas S/S' usando a teoria microscópica para o caso de constantes de difusão diferentes, isto é, diferentes ξ , e o campo crítico de uma camada é maior que o da outra, mas com similar temperatura crítica volumétrica para as duas camadas supercondutoras. Eles observaram duas soluções possíveis para a nucleação da supercondutividade. A primeira é para a nucleação do parâmetro de ordem no supercondutor sujo, aqui chamado de S, e a segunda é para a nucleação da supercondutividade no supercondutor limpo, ou camada S'. O campo crítico real será sempre maior que as duas soluções [54].

O modelo Takahashi-Tachiki é caracterizado por uma descontinuidade na dependência com a temperatura do campo crítico superior paralelo exibindo uma curvatura para cima em baixas temperaturas. Isto acontece quando a nucleação da supercondutividade muda da camada S' para a camada S. A Figura 17 ilustra o comportamento do campo crítico para um particular conjunto de parâmetros onde este feito pode ser observado.

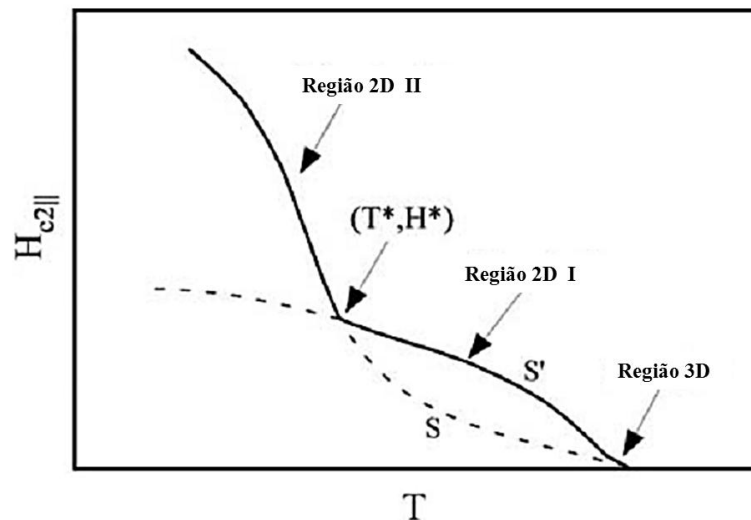


Figura 17: Esquema do modelo Takahashi-Tachiki ilustrando as regiões 2D e 3D e o ponto onde a nucleação da supercondutividade muda da camada S' para a camada S [54].

Para temperaturas muito próximas de T_C o campo crítico paralelo tem um comportamento tridimensional, usualmente linear. Logo abaixo de T_C há uma transição para o comportamento bidimensional com nucleação na camada S'. Com a redução da temperatura o

comprimento de coerência torna-se menor que d_S , o parâmetro de ordem fica restrito dentro da camada S e a supercondutividade se comporta como em material volumétrico S que tem um campo crítico alto. Em T^* a supercondutividade passa da nucleação inicial em S' para a camada S e ocorre uma descontinuidade no campo crítico [54].

Essa mudança de dimensionalidade no campo crítico paralelo foi observada experimentalmente em alguns trabalhos [43,87,88], como discutido na seção 3.1.2.

4. PREPARAÇÃO E CARACTERIZAÇÃO

Neste capítulo serão descritas as técnicas de preparação e caracterização dos dois grupos de amostras estudadas. No grupo A serão estudadas as tricamadas de Pb/Ge/Nb depositadas em substratos contendo centros de ancoragem e seus respectivos filmes de referência depositados em substrato de Si/SiO₂, representado por Si. Os substratos contendo centros de ancoragem são constituídos por membranas de alumina porosa preenchidas com nanofios de Ni, representado por AAONi. O Pb foi depositado com espessura de 500 nm, o Nb com 40 nm e o Ge com 6 nm. A camada de Ge foi depositada sobre o Pb para proteger da oxidação. As amostras do grupo A estão listadas a seguir:

- AAONi-Pb/Ge/Nb
- Si-Pb/Ge/Nb
- AAONi-Pb/Ge
- Si-Pb/Ge
- AAONi-Nb
- Si-Nb

No grupo B serão estudadas as bicamadas de Nb/Sn com espessura de cada camada de 50, 100, 200 e 500 nm e seus respectivos filmes de referência, depositados em substrato de Si.

As amostras do grupo B estão listadas a seguir:

- Nb(500nm)/Sn(500nm)
- Nb(200nm)/Sn(200nm)
- Nb(100nm)/Sn(100nm)
- Nb(50nm)/Sn(50nm)
- Nb(500nm)
- Nb(200nm)
- Nb(100nm)
- Nb(50nm)
- Sn(500nm)
- Sn(200nm)
- Sn(100nm)
- Sn(50nm)

As amostras contendo centros de ancoragem tiveram sua preparação iniciada com a síntese das membranas, depois foi realizada a deposição dos nanofios de níquel, por meio de processo eletroquímico em ambos os casos; e por último a deposição da tricamada supercondutora de Pb/Ge/Nb por meio das técnicas de evaporação e *sputtering*, respectivamente. As demais amostras, as bicamadas de Nb/Sn, foram obtidas a partir da deposição dos filmes e das bicamadas supercondutoras por meio da deposição por *sputtering*.

A caracterização morfológica das amostras foi realizada com auxílio das técnicas de Microscopia Eletrônica de Varredura, Microscopia de Força Atômica e perfilometria. A caracterização estrutural foi realizada utilizando a técnica de difração de raios X. As caracterizações magnéticas foram realizadas com auxílio dos magnetômetros VSM, MPMS-SQUID e PPMS-VSM. Para a caracterização elétrica foi utilizado o PPMS.

A descrição da preparação e das técnicas de caracterização das amostras estudadas é dada a seguir.

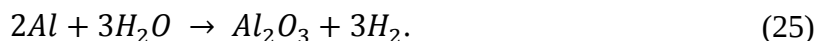
4.1 Preparação

4.1.1 Síntese das membranas de alumina porosa

Membranas de alumina porosa têm sido largamente reportadas na literatura [93]. Devido ao seu comportamento de auto-ordenamento, ou seja, por possuírem nanoporos hexagonalmente ordenados, elas são frequentemente usadas como moldes na confecção de nanofios e nanotubos [94].

A membrana de alumina é obtida a partir do processo de anodização do alumínio. Esse processo é realizado em uma célula eletrolítica, com dois eletrodos submersos numa solução eletrolítica na presença de uma diferença de potencial (tensão). Para realizar a anodização do alumínio uma folha metálica de alumínio é conectada ao ânodo de uma fonte de tensão DC. Uma solução ácida é normalmente usada como eletrólito. Como cátodo é colocado um metal inerte. Sob a ação de uma voltagem o alumínio é oxidado em cátions Al^{3+} e íons de hidrogênio são reduzidos para produzir hidrogênio no cátodo. Parte dos cátions de Al^{3+} são dissolvidos no eletrólito e outra parte forma uma camada de óxido de alumínio na superfície do metal. Íons contendo oxigênio são fornecidos pelo eletrólito.

A reação química geral para a anodização do alumínio pode ser escrita como:



Esta reação expressa a quebra da molécula de água para a formação da alumina. Apesar de correta esta reação não apresenta detalhes do processo eletroquímico. É necessário entender as reações químicas que ocorrem separadamente nas interfaces óxido/eletrólito e metal/óxido.

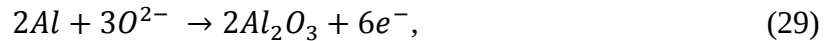
Sob a ação do campo elétrico ocorre a oxidação do alumínio na interface metal/óxido dando origem aos cátions Al^{3+} e os ânions são gerados a partir da dissociação da água na interface óxido/eletrólito. A reação de oxidação do alumínio e as reações de dissociação da água são expressas pelas Equações 26, 27 e 28, respectivamente.



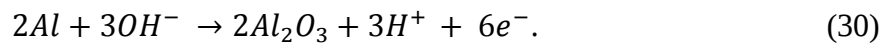
e



Segundo Su e colaboradores [95], a contribuição dos ânions O^{2-} e OH^{-} para a formação da alumina é dada pelas seguintes reações:



e



Os cátions H^{+} são consumidos no cátodo pela reação de evolução de hidrogênio, que é dada por:



Dependendo do eletrólito usado pode-se formar uma barreira de óxido ou uma barreira de óxido poroso. Quando o pH do eletrólito é maior que 5 é formada uma barreira de óxido e quando o pH é menor que 5 forma-se a barreira de óxido poroso (membrana de alumina).

Em geral, a membrana de alumina possui um arranjo hexagonal de células contendo poro no centro de cada célula (Figura 18(a)). A membrana de alumina é caracterizada por alguns parâmetros característicos: diâmetro de poro D_p , distância entre poros D_{ent} , espessura da barreira de óxido ou fundo de poro f_p e espessura da membrana d , como pode ser visto na Figura 18(b).

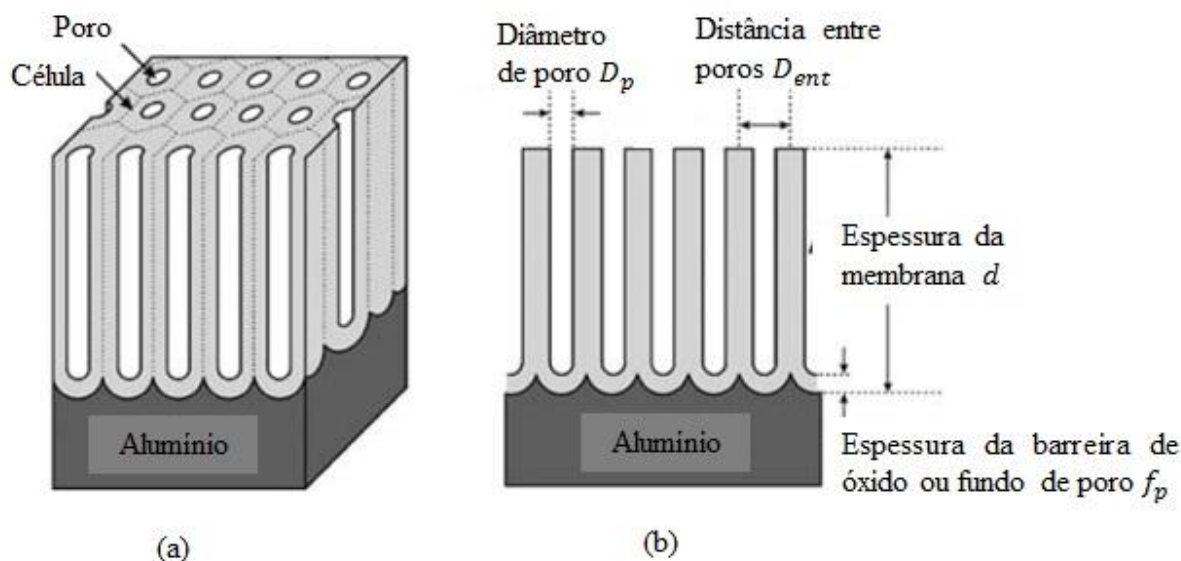


Figura 18: (a) Estrutura idealizada da alumina porosa. (b) Visão lateral da membrana [96].

O diâmetro do poro, D_p , é linearmente proporcional à tensão de anodização, $D_p = kU$. Onde k é a constante de proporcionalidade com valor de $1,29 \text{ nm V}^{-1}$ [97]. O diâmetro do poro não muda com o tempo de anodização. Em alguns trabalhos o diâmetro do poro é alargado após a anodização [98]. A distância entre os poros, d_p , também é linearmente proporcional à tensão de anodização, $D_{ent} = wU$. Onde w é a constante de proporcionalidade com valor de $2,5 \text{ nm V}^{-1}$ [99]. O fundo de poro, f_p , é uma camada de óxido de alumínio que cresce entre o alumínio e o início dos poros, essa camada é dielétrica, densa e compacta e tem a mesma composição do filme óxido que se forma naturalmente. O f_p torna quase impossível a deposição eletroquímica de metais no interior dos poros. A espessura do f_p depende diretamente da tensão de anodização [96]. A espessura da membrana, d , é dependente do tempo e da temperatura de anodização e está associada às taxas de formação e dissolução do óxido.

A membrana de alumina cresce com o maior ordenamento possível em condições específicas de eletrólito e tensão. As condições são: 25 V em 0,3 M de H_2SO_4 , 40 V em 0,3 M de $H_2C_2O_4$ e 195 V em 0,1 M de H_3PO_4 . Em temperaturas que variam de 0 a 15 °C. Menores ou maiores tensões também formam a membrana de alumina, porém com menores regiões de ordenamento [100]. Os eletrólitos citados possuem diferentes condutividades elétrica e diferentes valores de pH, o que leva a condições diferentes para o regime de auto-organização ou ordenamento.

Vários são os fatores que influenciam na auto-organização da membrana de alumina, entre eles: tensão de anodização, densidade de corrente, espécies do eletrólito e suas concentrações e a temperatura de anodização. Todos estes estão correlacionadas uns aos outros e cada parâmetro deve ser considerado para o entendimento do mecanismo de formação.

Tensão de anodização - É um dos parâmetros mais importantes na determinação geométrica da membrana de alumina, pois a tensão de anodização tem relação direta com o diâmetro do poro e a distância entre poros. A tensão de auto-ordenamento é fortemente dependente do pH de cada eletrólito, ou seja, da capacidade de dissolução do óxido [101].

Densidade de corrente de anodização - O auto-ordenamento da membrana de alumina pode estar associado com alta densidade de corrente, diretamente relacionada com o alto campo elétrico através da barreira perto do fundo dos poros. Quando a densidade de corrente é elevada, o crescimento do óxido é rápido, isto induz uma força de compressão na camada de barreira entre cada limite da célula. E, a parte inferior das células crescidas na barreira sob um alto campo deve ser pressionada uma contra a outra, de modo que resulta no auto-ordenamento com o crescimento da barreira porosa [102].

Eletrólito - O tipo e a concentração do eletrólito são considerados parâmetros importantes para a formação da membrana de alumina. Em geral são usados ácidos que contenham oxigênio em sua composição. Os eletrólitos mais utilizados são compostos por ácido sulfúrico, ácido oxálico e ácido fosfórico. Outros ácidos, tais como ácido malônico e ácido tartárico [102], são reportados como ácidos propícios para obtenção de alumina porosa auto-ordenada.

Temperatura de anodização - A temperatura do eletrólito além de controlar o crescimento do óxido influencia na formação uniforme do óxido. Isso ocorre porque com a diminuição da temperatura a taxa de crescimento também diminui fazendo com que a barreira de óxido cresça mais uniforme.

Uma das maneiras de preparar membranas de alumina porosa é através do método que utiliza duas anodizações. A primeira anodização é utilizada para criar pontos de nucleação dos poros para que estes cresçam com maior ordenamento na segunda anodização [94]. Neste trabalho seguimos este método de preparação.

Para a preparação da membrana de alumina polimento e a anodização foram realizados em uma célula eletroquímica consistindo de solução aquosa com ácido oxálico, um eletrodo positivo onde encontra-se a placa de alumínio e um eletrodo negativo onde pode ser usado

uma placa de grafite ou uma rede de platina. Para controlar a corrente e a tensão aplicada foram usadas fontes de corrente e tensão.

As membranas utilizadas neste trabalho foram preparadas no laboratório do Grupo de Nanomagnetismo e Processos de Magnetização do Instituto de Ciências de Materiais de Madrid (ICMM), sob a supervisão do professor Manuel Vazquez e foram obtidas como segue.

Foram utilizados discos de alumínio Goodfellow 99,999% com espessura de 0,5 mm e diâmetro de 25 mm e seguimos estes passos: limpeza, polimento eletroquímico, primeira anodização, remoção da membrana da primeira anodização, segunda anodização, remoção do alumínio e abertura do fundo de poro.

Limpeza: Os discos de alumínio foram lavados em lavadora ultrassônica com acetona por 10 minutos e com etanol por 5 minutos.

Polimento eletroquímico: Os discos foram polidos em uma célula eletroquímica contendo 125 ml de ácido perclórico (HClO_4) e 375 ml de etanol ($\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$). Não foi controlada a temperatura, mas a solução foi mantida em geladeira quando não estava em uso, isto foi necessário para manter a corrente menor que 2 A durante o polimento. Uma tensão de 20 V DC foi aplicada por 2,5 minutos (tempo otimizado pelo grupo do professor Vazquez). Nesta célula o alumínio fica no polo positivo e o eletrodo de platina no polo negativo. Após o polimento os discos foram lavados com água destilada e secados com ar comprimido.

Primeira anodização: Os discos foram montados em células feitas de teflon que comportam 4 discos. As células foram preenchidas com uma solução aquosa contendo 0,3 M de ácido oxálico. Foi aplicada uma tensão de 40 V por um período de 24 horas. A solução foi mantida em 3° C e agitada com um agitador mecânico durante todo o processo.

Remoção da membrana da primeira anodização: Passadas as 24 horas de anodização a membrana formada foi removida com solução aquosa contendo 0,3 M de ácido crômico e 0,4 M de ácido fosfórico. Para a remoção foi substituída a solução de ácido oxálico pela solução contendo ácido crômico e ácido fosfórico e aguardadas 24 horas. Passadas as 24 horas, a célula foi lavada com água destilada, secada com ar comprimido e conferido se a membrana foi totalmente removida. A membrana é totalmente removida quando o alumínio volta a ficar espelhado quando seco, pois foi polido.

Segunda anodização: A segunda anodização foi realizada nas mesmas condições da primeira anodização, porém, com duração de 20 horas. Após as 20 horas de anodização os discos contendo a membranas foram removidos da célula, lavados com água destilada e secados com ar comprimido. Com estas condições foi possível obter membranas de alumina com poros de 40 nm de diâmetro e com espessura de 40 μm .

Remoção do alumínio: O alumínio restante no fundo dos poros foi removido com uma solução aquosa contendo 0,3 M cloreto de cobre (CuCl) e ácido clorídrico 35% (HCl). O tempo de exposição à solução foi em torno de 20 minutos.

Abertura do fundo dos poros: O fundo dos poros foi aberto pela exposição à solução aquosa contendo 5% de ácido fosfórico. A amostra foi colocada sobre uma fita de pH com a parte a ser aberta voltada para cima. Foram gotejadas 2 ou 3 gotas da solução sobre a amostra e aguardado até que a solução atingisse a fita de pH. O tempo de abertura foi de aproximadamente 90 minutos. Repetiu-se o processo, por aproximadamente 2 minutos, para confirmar a abertura e depois as amostras foram lavadas, secadas e guardadas.

4.1.2 Deposição dos nanofios de níquel

Nanofios de materiais ferromagnéticos, tais como níquel, ferro e cobalto são muito estudados para diversas aplicações, tais como estoque de informação [103], gravação magnética [104], spintrônica [105], biotecnologia [106], entre outras. Entre as técnicas com as quais podem ser confeccionados temos: Litografia Ótica, Metalorgânica, Deposição Química de Vapor (MOCVD), Epitaxia por Feixe Molecular (MBE) e eletrodeposição. A confecção de nanofios por eletrodeposição tem sido considerada umas das técnicas mais fáceis e produz grandes quantidades de nanofios.

Nanofios podem ser produzidos no interior dos poros das membranas de óxido de alumínio por meio de eletrodeposição. Nesse processo as dimensões dos nanofios, tais como diâmetro e comprimento, são dependentes das dimensões da membrana em que eles são confeccionados. Para a eletrodeposição, em geral, são usadas soluções contendo os íons desejados, e pode ser realizada de três maneiras: eletrodeposição pulsada, eletrodeposição AC, eletrodeposição DC e [107].

Eletrodeposição pulsada (PED), este método foi proposto por Nielsch e colaboradores [108]. Na eletrodeposição pulsada faz-se necessário o estreitamento da barreira no fundo dos poros. A PED é caracterizada pela aplicação de três pulsos: pulso de deposição, pulso de descarga e pulso de recuperação.

No pulso de deposição é aplicado um pulso de corrente constante durante o qual o material é depositado. A intensidade do pulso depende do material a ser depositado e também da solução usada. No pulso de descarga é aplicado um pulso de potencial constante de mesma

magnitude do potencial aplicado durante o processo de redução (para não danificar a barreira). Este pulso é usado para descarregar a barreira, que atua como um capacitor. Este também serve para homogeneizar a membrana, ajudando a reparar pequenas quebras que podem aparecer durante o primeiro pulso. O pulso de recuperação é usado para neutralização elétrica da célula, é um tempo de repouso onde nem corrente nem potencial são aplicados. Neste tempo ocorre a recuperação de concentração de íons e pH no fundo dos poros onde ocorre a eletrodeposição.

Eletrodeposição AC (corrente alternada) é um método que permite depositar metais no interior da membrana sem remoção do substrato de alumínio, em geral é utilizado o estreitamento da barreira no fundo dos poros. Neste método é utilizada uma fonte de tensão AC e uma voltagem constante é aplicada. Na eletrodeposição AC não é possível controlar a morfologia do material depositado, devido às altas densidades de corrente.

Eletrodeposição DC (corrente direta) neste método é necessário remover a membrana do alumínio, remover o fundo do poro e depositar uma camada metálica em um dos lados da membrana. A camada metálica atua como eletrodo. É um processo complexo que consome tempo e a membrana de alumina pode ser facilmente quebrada durante o processo.

Nos três casos a eletrodeposição pode ser influenciada por alguns parâmetros:

- **Temperatura do eletrólito:** influencia a velocidade de difusão dos íons.
- **Agitação:** favorece a difusão dos elétrons no eletrólito e a remoção de H_2 que pode inibir o processo de deposição. Também ajuda a manter constante a concentração do eletrólito e o pH na interface eletrólito/metal (substrato).
- **pH:** se muito alto resulta na presença de íons OH^- ao redor dos íons metálicos, o que dificulta a deposição.
- **Tensão de deposição:** determina as espécies e a quantidade que serão depositadas.

A obtenção dos nanofios se deu por meio de eletrodeposição DC e também foi realizada no ICMM seguindo estes passos: (1) deposição de 100 nm de ouro por evaporação, (2) deposição de 50 nm de ouro por eletrodeposição e (3) deposição dos nanofios. A camada de 100 nm de ouro foi depositada no fundo dos poros para atuar como eletrodo, a deposição foi realizada com auxílio de uma evaporadora. Em uma célula eletroquímica, com solução contendo íons de ouro, foi realizada a deposição de ouro no interior dos poros. Este procedimento foi adotado com intuito de prevenir uma possível obtenção de nanofios inicialmente ocos. Os nanofios de níquel foram eletrodepositados no interior dos poros utilizando uma célula eletroquímica contendo solução aquosa de 100 ml com 20g $NiSO_4 + 4g$

$\text{NiCl}_2 + 4\text{g H}_3\text{BO}_3$. Foi utilizada uma fonte de tensão DC e a tensão de deposição foi de 1 V com relação ao eletrodo de referência Ag/AgCl (prata cloreto de prata).

4.1.3 Deposição dos filmes supercondutores

Sputtering

Os filmes supercondutores foram depositados por deposição física de vapor (PVD). *Sputtering* e Evaporação são técnicas de PVD e foram empregadas neste trabalho. Nas técnicas PVD o material a ser depositado é transformado em vapor por um processo físico térmico ou colisão. Na deposição física de vapor não ocorrem reações químicas no processo.

No *sputtering* DC convencional, o alvo funciona como o cátodo no circuito e tem alta voltagem negativa DC a ele aplicada. O substrato serve como o anodo. Um gás inerte é colocado na câmara de tratamento a uma pressão específica. Ao aplicar-se uma tensão, surge uma pequena corrente elétrica, devido à presença de íons e elétrons. Isso provoca a aceleração dos elétrons, que acabam por colidirem com os átomos do gás inerte, ionizando alguns destes átomos, produzindo íons e mais elétrons, responsáveis pela manutenção da descarga. O meio no qual ocorrem as reações é denominado plasma. Ao atingir o cátodo, os íons arrancam alguns átomos do alvo. Estes átomos não têm direção preferencial espalhando-se por toda a câmara. Porém, alguns desses átomos atingem o substrato, ali se condensam e formam o filme [109]. O processo de *sputtering* pode ser dividido em quatro categorias: DC, AC ou RF, reativo e *magnetron*. Estas categorias podem ter variantes e serem usadas em combinação.

O *sputtering* DC também é conhecido como *sputtering* catódico. O *sputtering* DC necessita de altas pressões (~ 100 mTorr), se a pressão for baixa, menor que 10 mTorr, íons serão perdidos nas paredes da câmara, o livre caminho médio dos elétrons entre as colisões será grande e os elétrons coletados pelo ânodo não serão reabastecidos pelas colisões dos íons no cátodo onde emite-se elétrons secundários, logo, a eficiência de ionização será baixa. Se a pressão for muito alta os átomos ejetados serão demasiadamente espalhados e não serão eficientemente depositados. Em geral, a taxa de deposição é proporcional à potência, ou ao quadrado da densidade de corrente e inversamente dependente do espaçamento dos eletrodos. O *sputtering* DC não permite a deposição de materiais isolantes [110].

Quando o material a ser depositado é isolante é necessário usar um *sputtering* com fonte RF ou AC. Quando um alvo isolante é utilizado em uma fonte DC ocorre o acúmulo de íons na superfície do alvo, pois os elétrons não podem migrar através do material do alvo para

compensar a carga dos íons incidentes. A aplicação de uma tensão AC de alta frequência ao alvo (13,6 MHz) permite bombardear sua superfície com elétrons no intervalo de tempo correspondente a meio ciclo, anulando a carga acumulada no meio ciclo imediatamente anterior. Isto elimina a formação de carga sobre uma superfície isolante, fornecendo um número igual de íons e elétrons [110]. Descargas RF podem ser mantidas em baixas pressões 1 a 15 mTorr.

A principal diferença entre *magnetron sputtering* e um sistema *sputtering* DC convencional descrito anteriormente é a adição de um campo magnético perto da área de alvo (cátodo). O *magnetron sputtering* pode possuir tanto fonte DC como RF e também pode trabalhar com sistema reativo. A ionização dos átomos de argônio no plasma se processa pelas colisões com elétrons. Para aumentar a eficiência dessa ionização, pode-se confinar os elétrons perto da superfície do alvo por meio de um campo magnético. Este campo faz com que os elétrons viajem em espiral ao longo de linhas de fluxo magnético perto do alvo em vez de serem atraídos para o substrato. A viagem em espiral torna o percurso dos elétrons muito maior, conseqüentemente aumentando a probabilidade de ocorrer colisões com átomos do gás inerte. Outra vantagem disso é que o plasma é confinado a uma área perto do alvo, sem causar danos à camada fina sendo formada. Uma das vantagens do *magnetron sputtering* em relação ao *sputtering* DC é que corrente com duas ordens de grandeza maiores são obtidas com a mesma tensão aplicada. Outra vantagem é a redução das pressões de operação, as pressões típicas no *magnetron sputtering* é de poucos mTorr [111].

Evaporação

O processo de deposição de filmes por evaporação pode ser por meio de evaporação térmica ou por bombardeamento de feixe de elétrons (*e-beam evaporation*).

No processo de evaporação por feixe de elétrons o material do alvo é bombardeado com um feixe de elétrons emitido por um filamento de tungstênio sob alto vácuo. O feixe de elétrons aquece e provoca a evaporação de átomos do material do alvo a ser depositado. Estes átomos se condensam no substrato formando um filme [109]. O processo de evaporação é constituído de três estágios: aquecimento do filamento para a produção do feixe de elétrons, aquecimento do material do alvo, evaporação do material do alvo para o substrato.

No primeiro estágio do processo evaporação o aquecimento do filamento irá produzir um feixe de elétrons que é excitado através do aquecimento. Esse processo é resultante da emissão termiônica, onde há um aumento do fluxo de elétrons que saem do metal em função do aumento da temperatura. No segundo estágio o feixe de elétrons produzido no filamento é

direcionado para o alvo por meio de campos magnéticos. O material do alvo é aquecido até a evaporação. No terceiro estágio o material do alvo, evaporado, move-se na câmara e é depositado no substrato. As pressões típicas no processo de evaporação são da ordem de 10^{-8} Torr.

Nos processos de deposição que envolve transformação de fases, a formação do filme pode ser entendida pelo estudo da cinética e termodinâmica de suas transformações de fases. Porém, isto só é válido quando o substrato já possui o material condensado ou tem a mesma composição do filme. Quando a estrutura química do substrato é diferente da do filme, deve ser considerado um processo de adsorção. Neste processo átomos são adsorvidos no substrato mais ainda não estão combinados com outros átomos adsorvidos. A condensação é iniciada com a formação de pequenos aglomerados através da combinação de vários átomos adsorvidos. Esses aglomerados são chamados de núcleos ou clusters e o processo de formação dos aglomerados é chamado de nucleação. Os núcleos vão crescendo e coalescendo, com isso um filme contínuo vai sendo formado, restando apenas canais, depois buracos. Por fim, um filme contínuo é formado. Com base em observações experimentais três modos básicos de crescimento de filmes são adotados: Ilhas (Volmer – Weber); Camadas (Frank – van der Merwe) e Stranski – Krastanov [109].

Os filmes e bicamadas utilizadas neste trabalho foram divididos em dois grupos. No grupo A foram depositados filmes e tricamadas de chumbo, germânio e nióbio em substratos de alumina preenchida com nanofios de níquel e em substratos de Si/SiO₂. Os filmes de chumbo foram depositados em uma evaporadora Varian no INPAC-KU Leuven, Bélgica. As deposições ocorreram na temperatura do nitrogênio líquido, 77 K (-196 °C), para obter filmes pouco rugosos. A espessura dos filmes foi controlada por meio de um cristal de quartzo situado no interior da câmara. A pressão de base foi da ordem de 10^{-9} Torr e a pressão de trabalho foi da ordem de 10^{-8} Torr. A taxa de deposição variou entre 2,5 e 3,5 Å/s. Os filmes de chumbo foram depositados com espessura de 500 nm. Uma camada de 6 nm de germânio foi depositada na superfície dos filmes de chumbo para proteger da oxidação. A pressão de trabalho para a deposição do germânio foi a mesma utilizada na deposição do chumbo e a taxa de deposição foi de 1 Å/s.

Filmes de nióbio foram depositados em um *sputtering* DC, também no INPAC-KU Leuven, Bélgica. As deposições foram realizadas em temperatura ambiente, com pressão de trabalho da ordem de 10^{-3} Torr. Foi aplicada uma tensão de 900 V e uma corrente de 100 mA. O tempo de deposição foi de 2 minutos. Os filmes de nióbio foram depositados com 40 nm de espessura. As condições de deposição dos filmes do grupo A estão descritas na Tabela 1.

Tabela 1: Parâmetros utilizados para a deposição de Pb, Ge e Nb.

	Taxa de deposição (Å/s)	Pressão de base (Torr)	Pressão de trabalho (Torr)	Temperatura do substrato (°C)
Pb	2,5 – 3,5	10^{-9}	10^{-8}	- 196
Ge	1	10^{-9}	10^{-8}	- 196
Nb	3,3	10^{-6}	6×10^{-3}	25

No grupo B foram depositados filmes e bicamadas de nióbio e estanho em substratos de silício (100) dopado com boro. A deposição dos filmes supercondutores, neste caso, foi realizada em *Sputtering* AJA no Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas (CBPF). Foram depositados filmes de nióbio e de estanho via *magnetron sputtering* usando fontes DC e RF, respectivamente, a partir de alvos de alta pureza. A espessura dos filmes foi estimada através da taxa de deposição, sendo esta determinada a partir de medidas de perfilometria. A pressão de base foi de 9×10^{-8} Torr e a pressão de trabalho foi de 5×10^{-3} Torr para ambos os materiais. As condições de deposição para o nióbio e o estanho estão descritas na Tabela 2.

Tabela 2: Parâmetros utilizados para a deposição de Nb e Sn.

	Taxa de deposição (Å/s)	Potência (W)	Corrente (mA)	Temperatura do substrato (°C)
Nb	1,3	70	265	600
Sn	0,8	10	40	25

4.2 Caracterização

4.2.1 Difração de raios X

A difração de raios X é uma técnica de caracterização estrutural de fácil manuseio e não destrutiva que permite determinar a estrutura cristalina e as fases cristalinas presente no material. A partir das posições angulares dos picos de difração é possível determinar o tamanho e a geometria da célula unitária.

A difração é resultado de radiação espalhada por um conjunto regular de centros de espalhamento cujo espaçamento é da mesma ordem de grandeza do comprimento de onda da radiação incidente. Assim, os raios X são espalhados pelos átomos de um material, uma vez que, os átomos estão arranjados em planos cristalinos. Estes planos são identificados pelos índices de Miller (hkl). Para que haja difração, os feixes de raios X espalhados por planos cristalinos (hkl) precisam estar em fase [112], isto vai depender do caminho percorrido pelo feixe. A diferença de caminho percorrido pelos feixes refletidos nos planos cristalinos adjacentes é $2d_{hkl} \sin \theta$, onde d é o espaçamento entre os planos cristalinos adjacentes e θ é o ângulo de espalhamento.

Para que ocorra a interferência construtiva a diferença de caminho entre os feixes de raios X é um número inteiro (n) de comprimento de onda (λ). A relação que demonstra essa condição é a equação de Bragg:

$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta. \quad (32)$$

O ângulo θ é conhecido como ângulo de Bragg e o 2θ é o ângulo de difração, que é medido experimentalmente.

A difração de raios X com grandes ângulos de incidência poderá atingir alguns micrômetros no interior do material sob investigação, de modo que quando se trata de análise de filmes finos a profundidade de penetração do feixe pode ser muito maior do que a espessura da amostra. Neste caso, a difração de raios X a baixo ângulo torna-se mais conveniente. Em geral, as medidas a baixo ângulo permitem diminuir e até suprimir contribuições que dificultam a aquisição dos dados, por exemplo, a contribuição do substrato. Na difração a baixo ângulo a geometria convencional é modificada para proporcionar um resultado de difração assimétrico, que permite atingir pequenas profundidades de penetração na amostra. Isto é possível pela incidência de um feixe de raios X paralelo à superfície da amostra com ângulo fixo e baixo. São considerados baixos os valores de θ menos que 10° [113].

Para as amostras deste trabalho as medidas de raios X foram realizadas com baixo ângulo de incidência, menores que 2° . As medidas foram realizadas por um difratômetro de raios X no CETENE, modelo D8 Advance da marca Bruker, com radiação K_α do Cobre. Todos os difratogramas foram obtidos no intervalo angular de $25^\circ - 90^\circ$ com variação de $0,02^\circ$ e tempo de exposição de 2 segundos.

4.2.2 Microscopia Eletrônica de Varredura

Análises de Microscopia Eletrônica de Varredura foram realizadas com o objetivo de investigar a morfologia das amostras estudadas, a profundidade de deposição dos nanofios e a espessura dos filmes supercondutores depositados.

A Microscopia Eletrônica de Varredura é uma das técnicas de caracterização microestrutural empregada em diversas áreas, mais evidentemente em física, química, biologia, engenharia de materiais, ciência de materiais e geociências. O princípio do microscópio eletrônico consiste em usar um feixe de elétrons de pequeno diâmetro para explorar a superfície da amostra ponto a ponto, por linhas sucessivas e transmitir o sinal do detector a uma tela catódica cuja varredura está perfeitamente sincronizada com aquela do feixe incidente [114]. A interação do feixe com a amostra permite caracterizar as propriedades da amostra, dentre elas a topografia da superfície, a composição e a cristalografia.

Os sinais obtidos da interação do feixe incidente com a amostra são: Elétrons secundários, elétrons retroespalhados, raios X característicos, raios X contínuos, fluorescência de raios X e elétrons Auger. Os sinais mais frequentemente usados são elétrons secundários, elétrons retroespalhados e raios X característicos. Os elétrons secundários são espalhados inelasticamente pelo feixe de elétrons primários, e são provenientes de regiões superficiais da amostra, entre 1 e 10 nm [115]. A partir desses elétrons é possível obter imagens com informações sobre a morfologia da amostra. Os elétrons retroespalhados são gerados por colisões elásticas entre o feixe de elétrons primários e o núcleo atômico. Os elétrons retroespalhados são provenientes de regiões mais profundas, de até 1,5 μm [115]. Os elétrons retroespalhados fornecem imagens características de variação de composição da amostra. Os raios X característicos são produzidos em qualquer região pelos elétrons primários e têm suficiente energia para remover um elétron de uma camada interna de outro átomo [116]. Eles podem surgir de regiões profundas, de até 3 μm . E por possuírem energia característica de cada átomo, fornecem informações elementares.

As análises de MEV das membranas foram realizadas no ICM, já as demais foram realizadas no Departamento de Física do UFPE.

4.2.3 Microscopia Eletrônica de Transmissão

A Microscopia Eletrônica de Transmissão também é de grande importância para a caracterização de materiais. As imagens são formadas, assim como no MEV, a partir da interação do feixe de elétrons com o material estudado. O feixe de elétrons é produzido, ajustado e focalizado por diversas lentes que são ajustadas para iluminar a amostra. O feixe atravessa a amostra sofrendo diversos tipos de espalhamento que dependem das características do material. As imagens são formadas, em uma tela ou chapa fotográfica por contrastes de regiões claras e escuras, onde as regiões escuras correspondem aos centros espalhadores.

Imagens de campo claro são formadas por elétrons que sofrem pouco desvio, enquanto as de campo escuro são formadas por elétrons difratados pelos planos cristalinos do material. Interações do feixe com o material geram raios X característicos que fornecem informações sobre os elementos químicos presentes na amostra [117].

O Microscópio Eletrônico de Transmissão (MET) permite a observação e o estudo da estrutura cristalina dos materiais.

As análises de Microscopia Eletrônica de Transmissão foram realizadas no Centro de Tecnologias Estratégica do Nordeste (CETENE).

4.2.4 Microscopia de Força Atômica

As análises de Microscopia de Força Atômica (AFM) foram realizadas para a caracterização da topografia e rugosidades das amostras.

A Microscopia de Força Atômica pode ser usada para estudar tanto amostras condutoras como isolantes. O Microscópio de Força Atômica mede a força entre a agulha e a amostra. As forças de interação entre a agulha e a amostra podem ser de Van der Waals, eletrostáticas ou magnéticas. Estas forças dependem das características da agulha e do material estudado. Uma agulha é montada na extremidade de um suporte, uma força exercida pela amostra sobre a agulha produz um deslocamento do suporte. Esse deslocamento é medido em função da posição da agulha. A superfície superior do suporte é utilizada para refletir um raio laser e o movimento do suporte muda o ângulo de reflexão do raio laser, que é

detectado por um conjunto de fotodiodos [10]. Utilizado um *software* próprio do sistema convertem-se esses dados em uma imagem baseada na posição da agulha. O método permite medir deslocamentos de picômetros.

As medidas podem ser realizadas através dos modos de contato e não contato. O modo de operação mais simples é o modo de contato, no qual a agulha é arrastada em contato com a superfície e o deslocamento do suporte é medido. Métodos em que a agulha permanece afastada da superfície são menos invasivos e também fornecem informações a respeito das forças de longo alcance entre a amostra e a agulha.

Foram realizadas varreduras em diferentes regiões das amostras em uma área de 3x3 μm , no modo não contato. As medidas foram realizadas em condições ambiente, no Departamento de Física da UFPE.

4.2.5 Perfilometria

Perfilômetro é um equipamento que determina e mede o perfil da superfície de filmes por meio do contato e deslizamento de uma ponta de diamante sobre o mesmo. Devido à superfície rugosa dos filmes a ponte sobe e desce descrevendo a topografia da superfície sobre a qual desliza. A posição da ponta é controlada por um cristal piezoelétrico.

Nas medidas de perfilometria foi utilizado um equipamento Dektak 150 Surface Profiler da Veeco do CBPF. Foram realizadas varreduras de contato e obtidos os perfis da altura dos filmes depositados, tais como mostrado na Figura 19.

Para realizar as medidas os filmes foram depositados utilizando uma máscara retangular de tal forma que houvesse um degrau. Em um mesmo filme foram realizadas várias medidas em diferentes posições da amostra para obtenção de uma média. A partir das medidas de espessura e do tempo de deposição foi possível determinar a taxa de deposição para cada material a ser depositado. As medidas de espessura são mais confiáveis quando o filme possui espessura igual ou superior a 500 nm, assim, para determinar a taxas de deposição os filmes foram depositados até atingir essa espessura

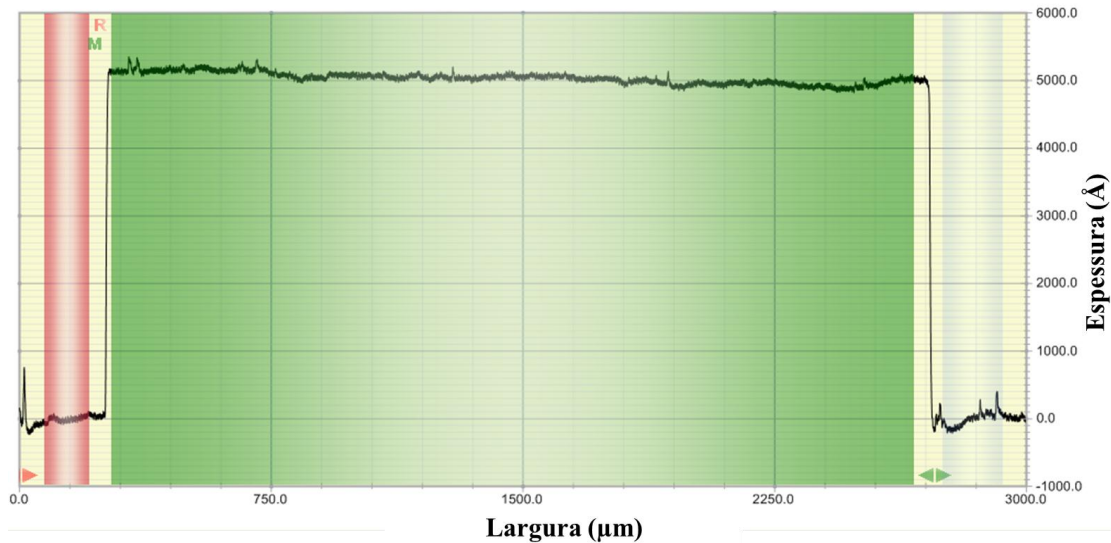


Figura 19: Imagem do programa de medidas do perfilômetro, com as regiões de medida em verde e referência em vermelho, para a amostra de Nb(500nm).

4.2.6 Caracterização elétrica

A caracterização elétrica das amostras foi realizada em um PPMS (*Physical Properties Measurement System*), modelo 6700, da Quantum Design. Este equipamento permite realizar medidas de resistividade AC e DC, Efeito Hall, Curvas IxV e corrente crítica. O PPMS possui um magneto supercondutor que permite obter campos de 7 T e as medidas podem ser realizadas em temperaturas de 1,8 a 300 K [118]. Neste trabalho foram realizadas medidas de resistividade DC.

As medidas de resistividade foram realizadas utilizando o método de quatro pontas. Este método consiste em aplicar corrente através de duas pontas (contatos) e medir a voltagem pelas outras duas. Os quatro contatos foram confeccionados de forma colinear. A corrente foi aplicada nos contatos externos e a tensão foi medida nos contatos internos.

As amostras foram montadas em um porta amostras chamado *puck*, Figura 20, e foram conectadas ao porta amostras por meio de contatos elétricos. Como pode ser observado na Figura 20(b), uma das extremidades de cada fio é conectada na amostra usando tinta de prata e a outra extremidade é conectada ao porta amostra com auxílio de solda de estanho. A resistência dos contatos e dos fios foi desprezada.

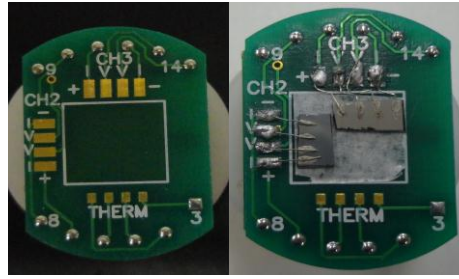


Figura 20: Vista superior do porta amostra utilizado no PPMS. a) Sem amostra e b) com amostra.

As medidas de resistividade foram realizadas em função do campo aplicado e em função da temperatura. Os parâmetros utilizados foram determinados para cada amostra de acordo com sua resposta.

4.2.7 Caracterização magnética

VSM

Para a caracterização magnética das amostras em temperatura ambiente, foram realizadas medidas em um Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM). Este equipamento opera em temperaturas entre 100 e 1000 K, permite aplicar campo de até 1,8 T e possui sensibilidade de 10^{-6} emu. O princípio do VSM é a indução magnética. Faz-se vibrar a amostra entre um campo magnético a uma frequência f , induzindo uma voltagem alternada nas bobinas de detecção. Esta voltagem é dada por:

$$V = MGA2\pi f \cos(2\pi ft), \quad (33)$$

onde M é o momento magnético da amostra, G é uma função da geometria das bobinas de detecção e A é a amplitude de vibração. A amostra é fixada na extremidade de uma haste rígida e o campo pode ser aplicado tanto na direção perpendicular ou paralelo à direção de vibração. A outra extremidade da haste é fixada em um motor que realiza a vibração da haste, e consequentemente da amostra. As amostras contendo centros de ancoragem foram caracterizadas no ICMC e no INPAC-KU Leuven.

PPMS-VSM

Para a realização de medidas magnéticas em temperaturas menores que a temperatura ambiente foi utilizado um PPMS-VSM (*Physical Properties Measurement System - Vibrating*

Sample Magnetometer). O sistema PPMS-VSM é um magnetômetro rápido e sensível, onde a medida básica é realizada pela oscilação da amostra perto de uma bobina de detecção. A tensão induzida é detectada pelas bobinas de forma sincronizada entre oscilação e detecção. A sensibilidade do sistema é da ordem de 10^{-6} emu. O equipamento permite realizar medidas entre 1,8 e 300 K e aplicar campos de até 9 T. É possível realizar medidas de magnetização em função do campo e da temperatura e medidas de susceptibilidade AC em função da temperatura.

Foram realizadas medidas de magnetização em função do campo aplicado em diferentes temperaturas, com o campo aplicado paralelo e perpendicular à amostra. Também foram realizadas medidas de magnetização em função da temperatura e medidas de susceptibilidade AC, em temperaturas menores que 10K. As tricamadas e seus respectivos filmes foram caracterizados no INPAC-KU Leuven e as bicamadas e suas respectivas amostras de referência foram caracterizadas na Escola de Engenharia de Lorena (EEL-USP) e no Instituto de Física Teórica de Natal.

SQUID

Outro equipamento utilizado para a realização de medidas magnéticas em temperaturas menores que a temperatura ambiente foi o magnetômetro MPMS (*Magnetic Property Measurement System*) com sensor SQUID (*Superconducting Quantum Interference Device*), da Quantum Design. O MPMS conta com um magneto supercondutor que permite aplicar campos magnéticos de até 5 T, e seu sistema de controle de temperatura opera num intervalo de 1,8 a 400 K. O sensor SQUID permite sensibilidade de medida da ordem de 10^{-9} emu [119]. Na realização das medidas de momento magnético desloca-se a amostra entre as bobinas de detecção, gerando variações no fluxo do campo de indução magnética. Por meio da integração do sinal da tensão induzida pela variação do fluxo magnético entre os instantes em que a amostra se encontra fora das bobinas detectoras e entre elas, calcula-se o seu momento magnético.

Foram realizadas medidas de magnetização em função do campo aplicado em diferentes temperaturas, com o campo aplicado paralelo e perpendicular à amostra. Também foram realizadas medidas de magnetização em função da temperatura, em temperaturas abaixo de 10K, com diferentes campos aplicados. O SQUID do INPAC-KU Leuven foi utilizado para caracterizar as tricamadas e suas respectivas amostras de referência.

5. TRICAMADA DE Pb/Ge/Nb COM CENTROS DE ANCORAGEM MAGNÉTICOS

Neste capítulo serão apresentadas as características morfológicas e as propriedades magnéticas e supercondutoras da tricamada de Pb/Ge/Nb e seus respectivos filmes de referência, depositados em substratos contendo centros de ancoragem magnéticos (AAONi) e em substratos de Si/SiO₂ (Si). Um diagrama representando as amostras depositadas em substrato contendo centros de ancoragem é mostrado na Figura 21. A tricamada e os filmes de Nb e Pb foram depositados na superfície da membrana em contato com os nanofios de níquel.

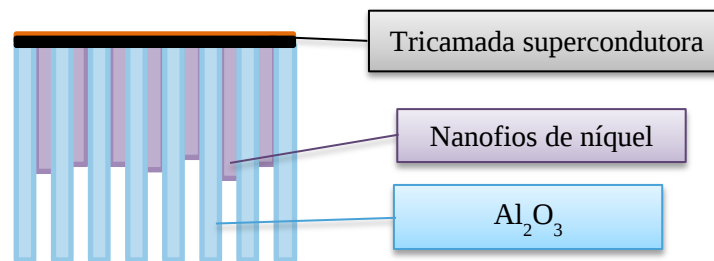


Figura 21: Diagrama da construção das amostras depositadas em AAONi.

Os resultados experimentais obtidos para estas amostras serão comparados aos parâmetros encontrados na literatura. Esses parâmetros estão resumidos na Tabela 3 para o Nb e o Pb; os dados foram extraídos da Ref. [9], onde os valores de ξ e λ foram considerados como uma média dos valores encontrados na literatura.

Tabela 3: Parâmetros volumétricos dos supercondutores Nb e Pb [9].

Material	T_C (K)	H_C (mT)	H_{C1} (mT)	H_{C2} (mT)	λ (nm)	ξ (nm)	κ
Nb	9,2	206,0	28,1	373	39	52	1,28
Pb	7,2	80,3			39	82	0,48

A primeira seção tratará das propriedades morfológicas que foram estudadas por meio de microscopia eletrônica de varredura e microscopia eletrônica de transmissão. A segunda seção abordará as propriedades magnéticas e supercondutoras que foram investigadas através da análise das medidas de magnetização e susceptibilidade, ambas com campo aplicado perpendicular ao plano das tricamadas e dos filmes. Foram realizadas medidas de

magnetização em função da temperatura, obtidas nos modos *ZFC* (*zero field cooling*) e *FC* (*field cooling*) e medidas de magnetização em função do campo aplicado.

5.1 Caracterização morfológica

Na Figura 22(a) é apresentada a superfície da membrana de alumina onde é possível observar regiões de auto-ordenamento da ordem de 1 μm e na Figura 22(b) o arranjo hexagonal dos poros é evidenciado. O diâmetro dos poros, obtidos a partir de medidas realizadas na micrografia, é de 40 nm e a distância entre eles é de 100 nm. A seção transversal da membrana é apresentada na Figura 22(c), observa-se que os poros da membrana estão preenchidos até aproximadamente a metade de seu comprimento total e os nanofios apresentam comprimento médio de 22 μm (Figura 22(d)).

A Figura 23 apresenta uma micrografia de transmissão de parte de um nanofio extraído da membrana, observa-se que o nanofio é formado por uma sequência de cristalitos alinhados. A extração dos nanofios da membrana foi realizada colocando um pedaço da membrana em solução aquosa contendo 0,3 M de ácido crômico e 0,4 M de ácido fosfórico e aguardando 24 horas. Depois desse período foi realizada a substituição da solução por etanol com a ajuda de uma pipeta.

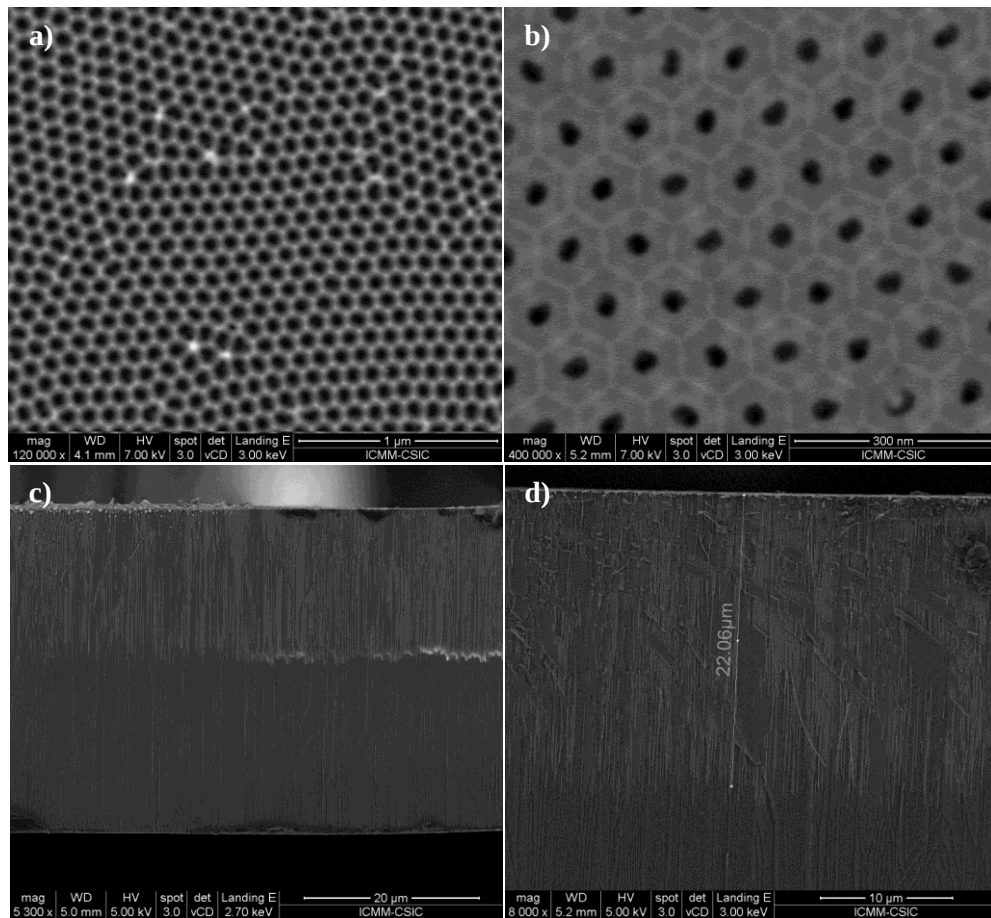


Figura 22: Imagens de MEV das membranas. a) Superfície com destaque para as regiões de auto-ordenamento. b) Superfície com destaque para o ordenamento hexagonal dos poros. c) Seção transversal da membrana com nanofios. d) Tamanho dos nanofios.

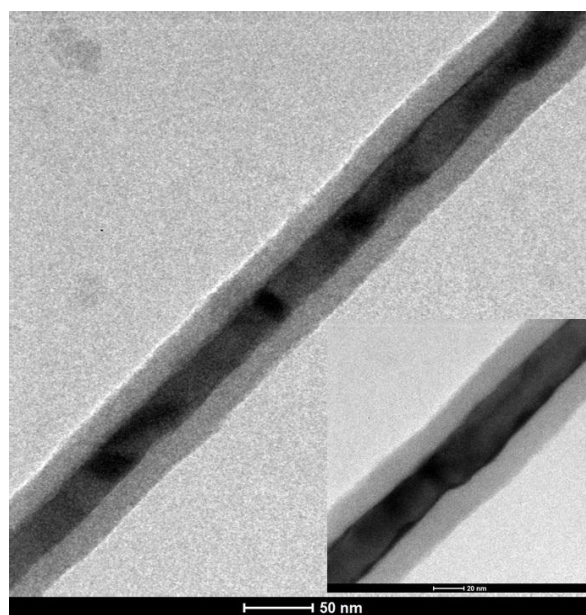


Figura 23: Micrografia de transmissão de um nanofio de níquel extraído da membrana.

5.2 Caracterização magnética e supercondutora

As curvas de magnetização normalizadas pelo valor da magnetização de saturação em função do campo aplicado na direção paralela ao eixo dos nanofios (curvas em azul) e perpendicular (curvas em preto) são apresentadas na Figura 24 nas temperaturas de 300 e 7,2 K. Os resultados mostram que o eixo dos nanofios é a direção de mais fácil magnetização.

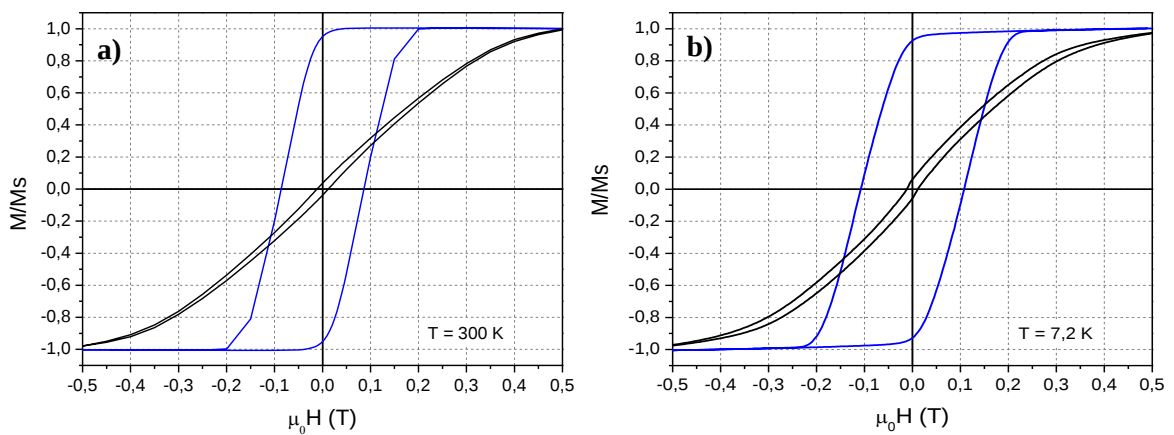


Figura 24: Curvas de magnetização normalizadas em função do campo aplicado na direção paralela ao eixo dos nanofios (curvas em azul) e perpendicular (curvas em preto) em a) 300 K e b) 7,2 K. M_s representa o valor da magnetização de saturação para cada caso.

As curvas obtidas em 300 K apresentam campo coercitivo de 86,1 mT e 12,0 mT e magnetização de saturação de 19 memu e 18 memu para campos paralelo e perpendicular respectivamente. As curvas obtidas em 7,2 K apresentam campo coercitivo de 107,8 mT e 11,8 mT e magnetização de saturação de 13,7 memu e 12,7 memu para campos paralelo e perpendicular, respectivamente.

Curvas de susceptibilidade AC para todas as amostras são apresentadas na Figura 25. As medidas foram realizadas na ausência de campo magnético DC, com campo magnético de excitação de $5 \mu T$ e frequência de 3333 Hz. A tricamada de Pb/Ge/Nb apresenta transição abrupta e temperatura de transição de 7,18 K para AAONi-Pb/Ge/Nb e 7,23 K para Si-Pb/Ge/Nb. O mesmo comportamento é observado para as amostras AAONi-Pb/Ge e Si-Pb/Ge, com temperaturas de transição de 7,19 K e 7,22 K, respectivamente. As amostras

AAONi-Nb e Si-Nb apresentam transição um pouco mais alargada e temperaturas de transição de 7,29 K e 6,97 K, respectivamente.

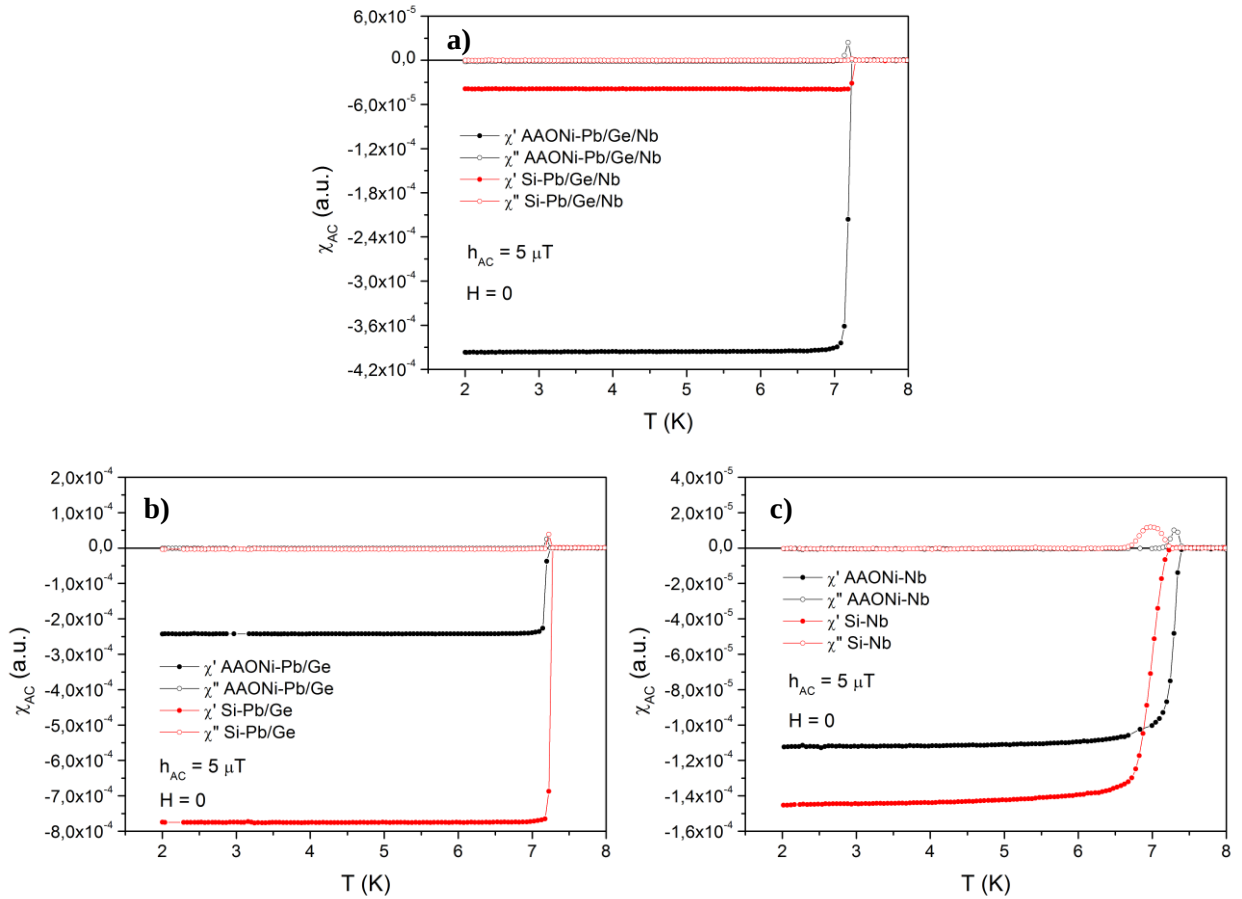


Figura 25: Susceptibilidade AC em função da temperatura para as amostras de a) AAONi-Pb/Ge/Nb e Si-Pb/Ge/Nb, b) AAONi-Pb/Ge e Si-Pb/Ge e c) AAONi-Nb e Si-Nb.

Os filmes de Pb apresentaram temperaturas de transição semelhantes a temperatura mostrada na Tabela 3 para o Pb volumétrico e os filmes de Nb apresentam temperaturas de transição menores que a temperatura de transição do Nb volumétrico.

As curvas de magnetização em função da temperatura são apresentadas na Figura 26. As tricamadas AAONi-Pb/Ge/Nb e Si-Pb/Ge/Nb e as amostras de referência de Si-Pb/Ge e AAONi-Nb apresentam *jumps*, nas curvas ZFC, em diferentes temperaturas e campos aplicados. Esses *jumps* são uma resposta da entrada de vórtices individuais dentro da amostra. Geim e colaboradores [26] publicaram resultado semelhante para um disco de alumínio com diâmetro de $2,5 \mu m$. Os *jumps* surgem a partir de 5 mT para as amostras AAONi-Pb/Ge/Nb,

Si-Pb/Ge e AAONi-Nb e a partir de 7,5 mT para a amostra Si-Pb/Ge. Em todos os casos surgem em temperaturas inferiores a 5 K.

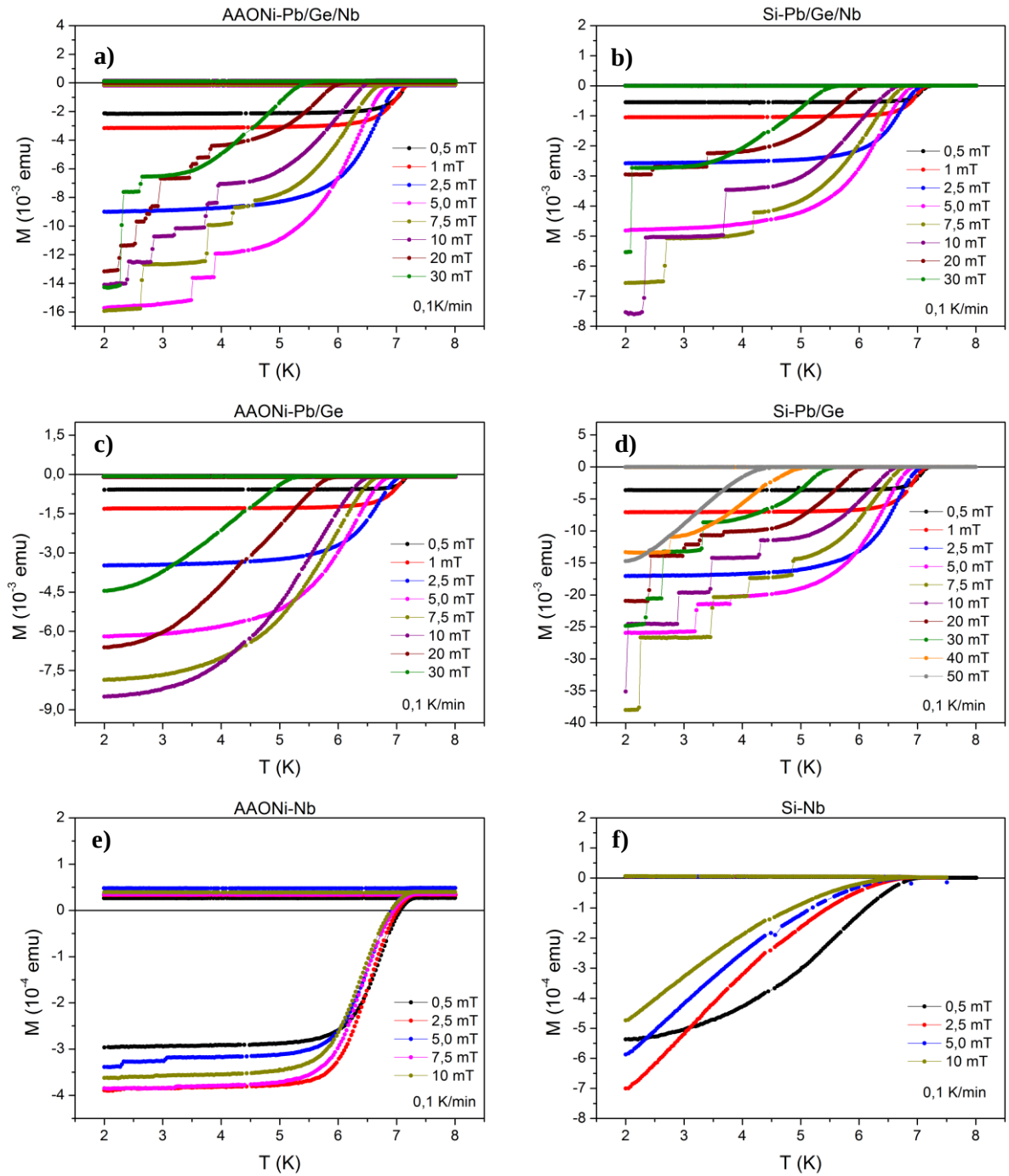


Figura 26: Magnetização em função da temperatura para as amostras de a) AAONi-Pb/Ge/Nb, b) Si-Pb/Ge/Nb, c) AAONi-Pb/Ge, d) Si-Pb/Ge, e) AAONi-Nb e f) Si-Nb.

A amostra AAONi-Nb apresenta deslocamento das curvas para valores positivos da magnetização, este deslocamento, possivelmente, está associado à magnetização dos nanofios e é observado devido ao baixo valor da magnetização do filme de Nb.

As curvas de histerese das tricamadas e das amostras AAONi-Pb/Ge e Si-Pb/Ge são mostradas na Figura 27. Nas amostras que contém os nanofios as curvas de histerese apresentam-se como uma soma da magnetização dos nanofios e dos filmes supercondutores. Todas as amostras apresentam reentrâncias (*flux jumps*) para determinados valores de temperatura. Os *jumps* representam entradas repentinas de fluxo magnético no interior da amostra, são observados em supercondutores do tipo II e ocorrem devido a instabilidades termomagnéticas. A presença de *jumps* foi observada em filmes finos de Nb [120] e Pb [121] e, recentemente, em tricamada de Nb/Pb/Nb [122]. A movimentação dos vórtices no supercondutor é o que dá origem às instabilidades termomagnéticas. Quando o campo aplicado é alterado ocorre uma redistribuição de fluxo no supercondutor. O deslocamento dissipativo das linhas de fluxo aumenta a temperatura local, suprimindo a supercondutividade nessa região e, conseqüentemente, facilitando a penetração adicional de fluxo. O processo é realimentado sempre que ocorre entrada adicional de vórtices, pois gera uma nova dissipação e aquecimento. Quando a temperatura sofre um grande aumento ocorre uma penetração muito grande de campo, causando o *jump* [123].

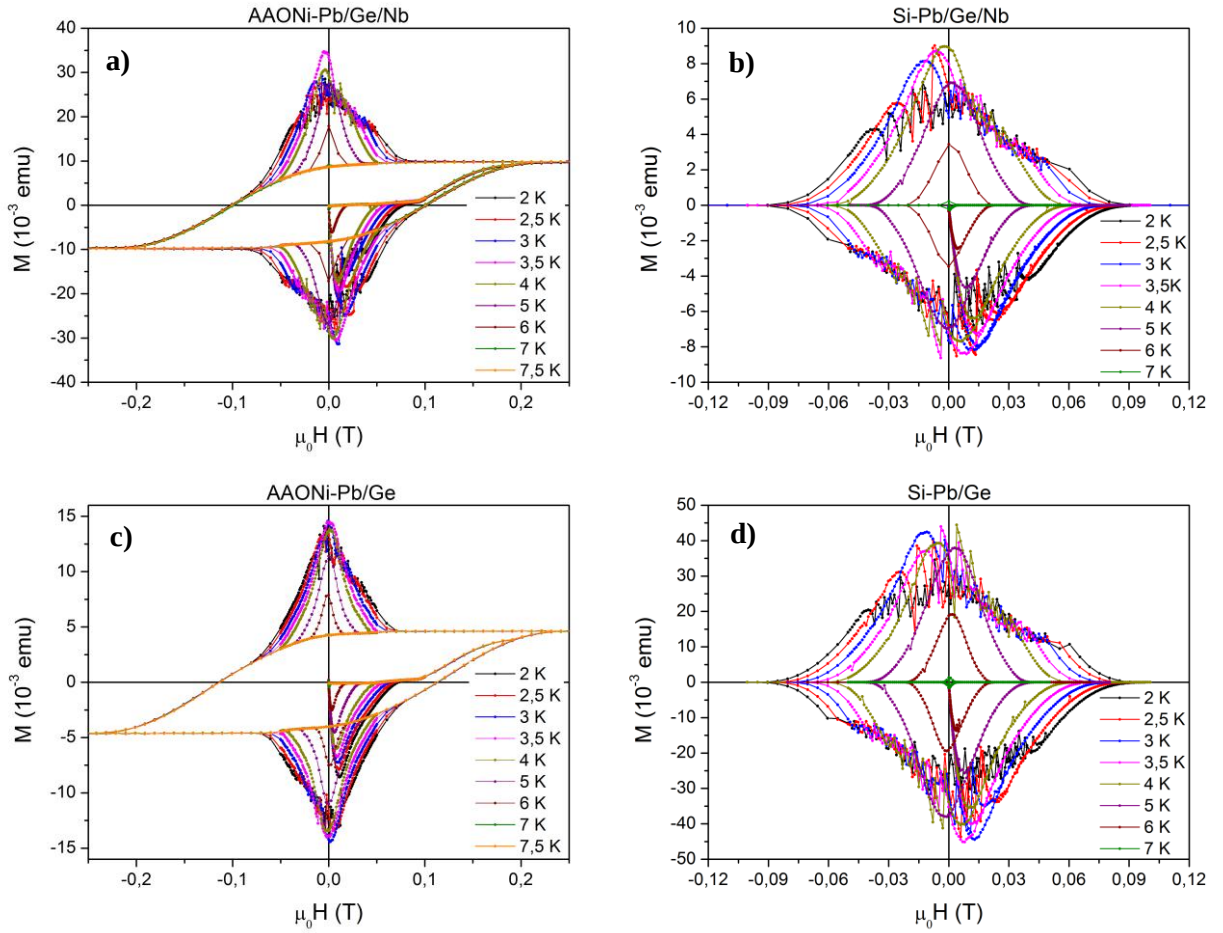


Figura 27: Magnetização em função do campo para as amostras de a) AAONi-Pb/Ge/Nb, b) Si-Pb/Ge/Nb, c) AAONi-Pb/Ge e d) Si-Pb/Ge

O primeiro ramo das curvas de histerese das tricamadas e das amostras AAONi-Pb/Ge e Si-Pb/Ge são mostradas na Figura 28. *Flux jumps* também são observados, com exceção da amostra AAONi-Pb/Ge, para: $T \leq 3$ K na tricamada AAONi-Pb/Ge/Nb, $T \leq 2,5$ K na tricamada Si-Pb/Ge/Nb e $T \leq 2,5$ K para a amostra Si-Pb/Ge.

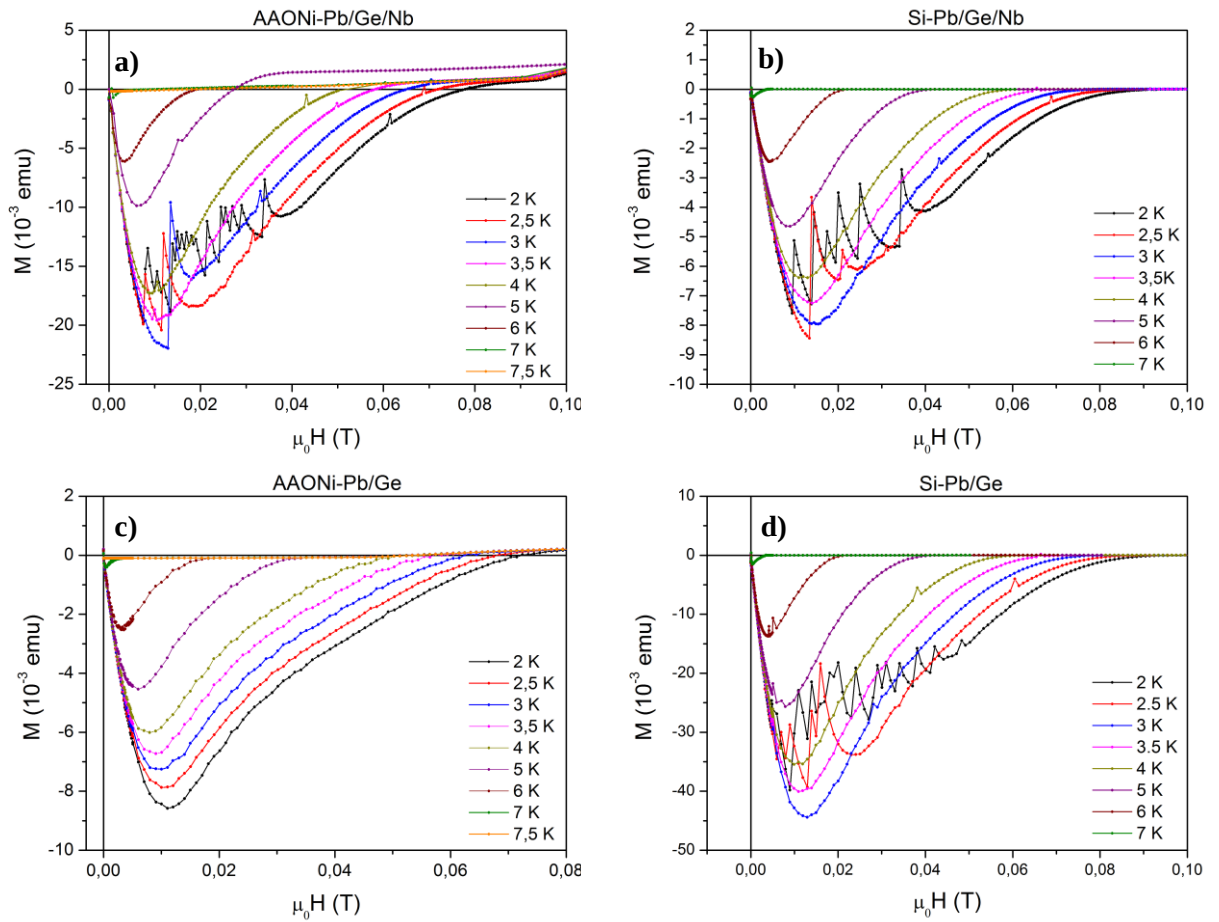


Figura 28: Primeiro ramo das curvas de magnetização em função do campo para as amostras de a) AAONi-Pb/Ge/Nb, b) Si-Pb/Ge/Nb, c) AAONi-Pb/Ge, d) Si-Pb/Ge e e) AAONi-Nb.

Durante este estudo um trabalho adicional foi realizado com a caracterização de filmes de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ com nanopartículas de Ba_2YTao_6 dispersas, foi observado que o Efeito Meissner Paramagnético (PME) aumenta com o aumento do campo magnético aplicado e é considerado que o PME resulta da forte ancoragem proporcionada pelas nanopartículas de Ba_2YTao_6 . Os resultados deste trabalho foram publicados na Ref. [124] e estão disponíveis no Apêndice A desta tese.

6. BICAMADAS DE Nb/Sn

Neste capítulo serão apresentadas as características estruturais e microestruturais bem como as propriedades supercondutoras das bicamadas de Nb/Sn e seus respectivos filmes de referência. As propriedades serão estudadas em função da espessura de cada camada; sendo as espessuras 50 nm, 100 nm, 200 nm e 500 nm, visando estudar as propriedades dos filmes supercondutores em função de sua espessura, quando comparada aos seus comprimentos característicos. Assim, todos os resultados experimentais obtidos para as amostras aqui estudadas serão comparados aos parâmetros encontrados na literatura. Os valores dos parâmetros supercondutores estão resumidos na Tabela 4 para o Nb e o Sn; os dados foram extraídos da Ref. [9], onde os valores de ξ e λ são considerados como uma média dos valores encontrados na literatura.

Tabela 4: Parâmetros volumétricos dos supercondutores Nb e Sn [9].

Material	T_c (K)	H_c (mT)	H_{c1} (mT)	H_{c2} (mT)	λ_L (nm)	ξ_0 (nm)	κ
Nb	9,25	206,0	28,1	373	39	52	1,28
Sn	3,72	30,5			42	180	0,23

A primeira seção tratará das propriedades estruturais e microestruturais que foram obtidas por difratometria de raios X de baixo ângulo, microscopia eletrônica de varredura, microscopia de força atômica e perfilometria. A segunda seção abordará as propriedades supercondutoras de cada amostra, que foram investigadas através da análise das medidas de transporte elétrico e de magnetização, onde foram realizadas medidas de resistividade em função da temperatura com diversos campos aplicados e o estudo da magnetoresistividade em diferentes temperaturas. As curvas $M(T)$ foram obtidas nos modos *ZFC* (*zero field cooling*) e *FC* (*field cooling*). As medidas foram realizadas com campo aplicado paralelo e perpendicular ao plano dos filmes e das bicamadas.

A partir das medidas de magnetoresistividade e das curvas de histerese foi possível obter os campos críticos das amostras. Os diagramas dos campos críticos, seus ajustes e cálculos dos comprimentos característicos serão discutidos na terceira seção. Algumas propriedades são obtidas a partir do ajuste dos diagramas dos campos críticos, este é o caso, por exemplo, do comprimento de coerência que pode ser obtido diretamente dos ajustes das

curvas de $\mu_0 H c_2(T)$, assim como do comprimento de penetração, obtido a partir de $\mu_0 H c_1(T)$, em supercondutores do tipo II.

6.1 Caracterização estrutural

6.1.1 Sn

A Figura 29 apresenta os difratogramas dos filmes de Sn para as diferentes espessuras, obtidos no intervalo de 25° - 90° . Os difratogramas mostram picos bem definidos, indicando uma fase policristalina sem nenhuma orientação preferencial, com simetria tetragonal e grupo espacial $I4_1/amd$ (Nº. 141), β -Sn. Para melhor visualização os difratogramas foram normalizados em relação ao pico de maior intensidade.

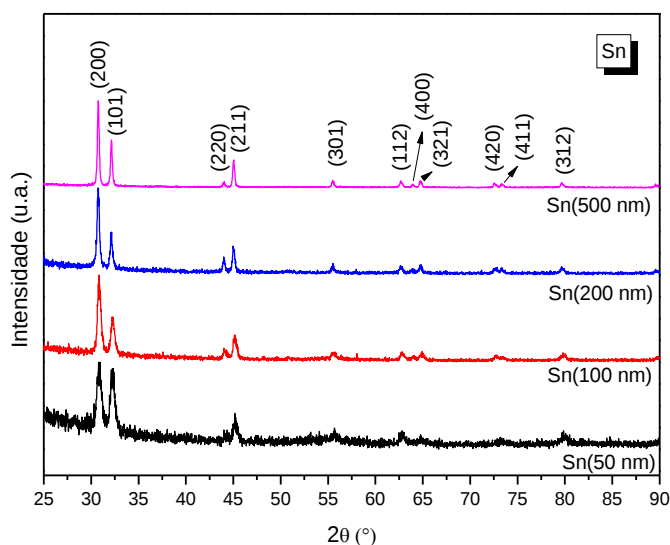


Figura 29: Difratogramas de baixo ângulo dos filmes de Sn com diferentes espessuras.

A morfologia dos filmes de Sn com espessura de 100 nm, 200 nm e 500 nm é apresentada na Figura 30. Observa-se, na parte mais escura das micrografias, uma distribuição homogênea, com pouca porosidade e a formação de grãos maiores isolados sobre a superfície dos filmes. É possível observar também que os grãos têm seus tamanhos aumentados de acordo com o aumento da espessura dos filmes; apresentam formas e tamanhos aleatórios, podendo, uma de suas dimensões, chegar a 200 nm, $1,3 \mu m$ e $3,2 \mu m$ para as amostras de

Sn(100nm), Sn(200nm) e Sn(500nm), respectivamente. As medidas foram obtidas utilizando o software de tratamento de imagens ImageJ.

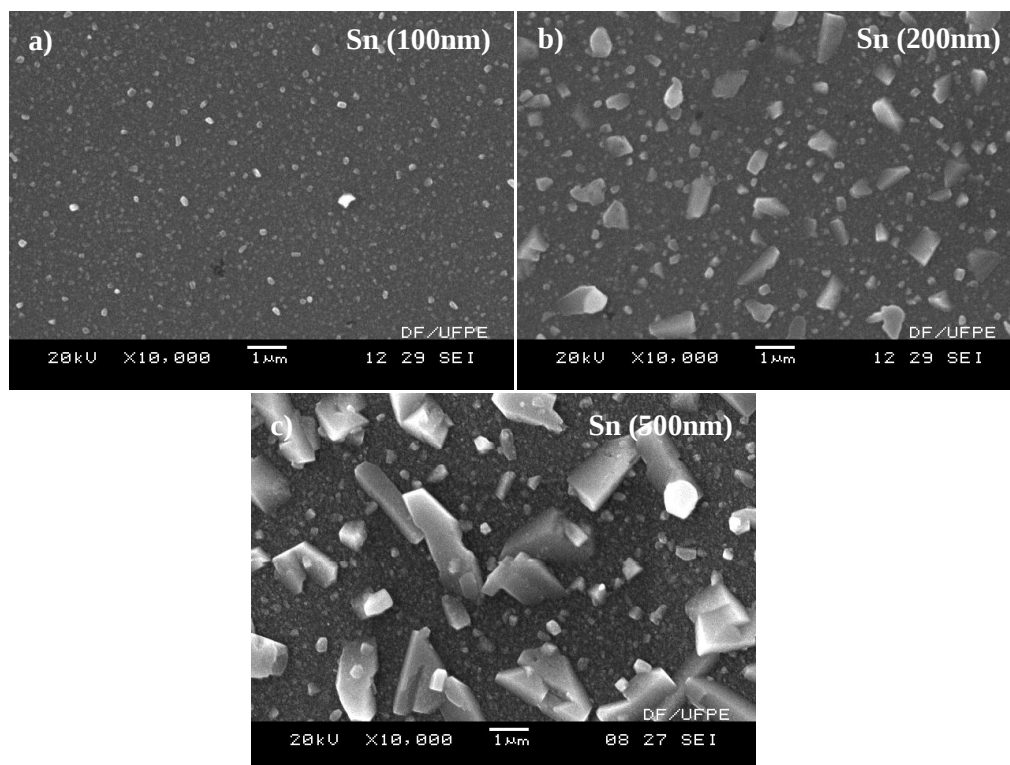


Figura 30: Imagens de MEV dos filmes de a) Sn(100nm), b) Sn(200nm), c) Sn(500nm).

A Figura 31 mostra as imagens 2D e 3D obtidas por AFM das amostras Sn(50nm) (Fig. 31(a)) e Sn(100nm) (Fig. 31(b)). O filme de Sn(50nm) apresenta-se bastante homogêneo, com grãos uniformemente distribuídos. O tamanho de grãos para este filme é de 20 nm, aproximadamente, e sua rugosidade, visualizada na imagem 3D da Figura 31(a), apresenta um valor médio de 4,3 nm. O filme de Sn(100nm) (Fig. 31(b)) apresenta-se mais rugoso que o de menor espessura, com rugosidade em torno de 9 nm e grãos com tamanho médio de 40 nm.

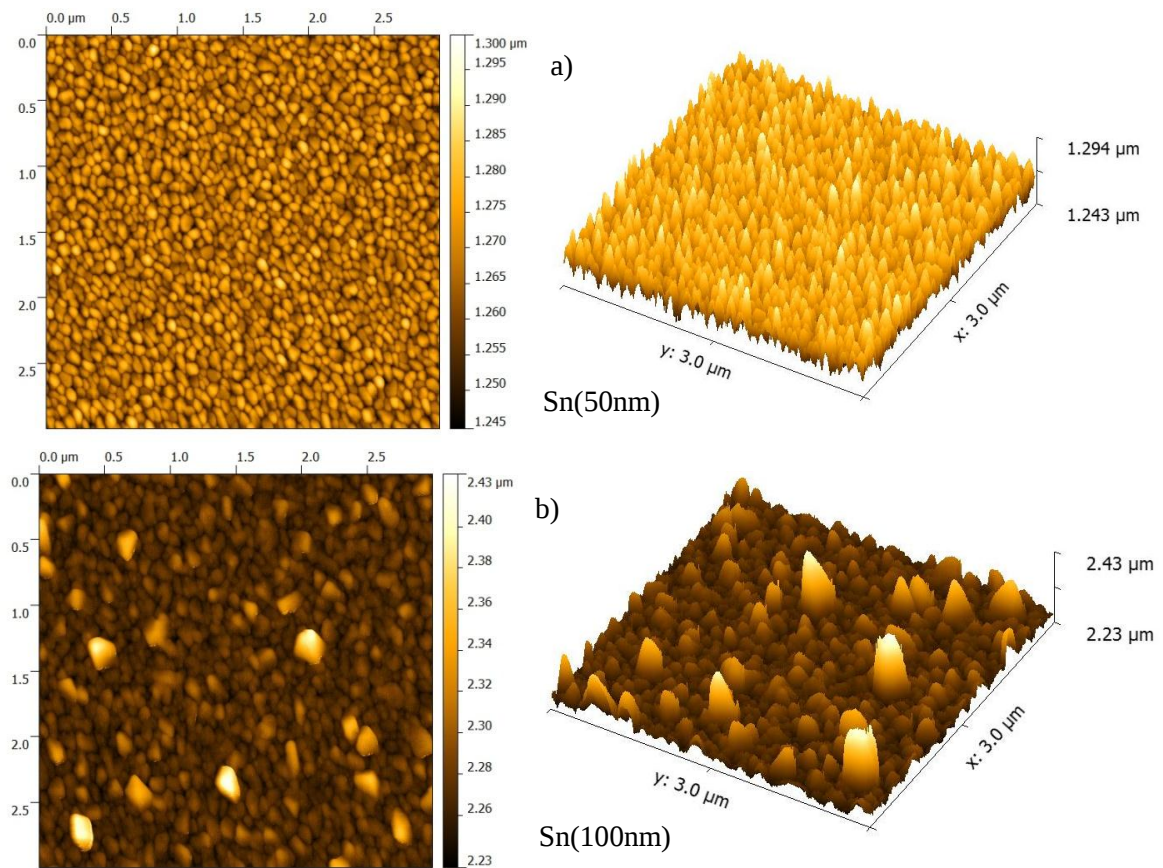


Figura 31: Imagens de AFM dos filmes de a) Sn(50nm) e b) Sn(100nm). As imagens à esquerda apresentam a morfologia superficial, 2D, enquanto que as imagens à direita mostram a morfologia 3D, destacando a rugosidade dos filmes.

Medidas de perfilometria foram realizadas para obter a taxa de deposição dos filmes de Sn e Nb. Um dos perfis das medidas de perfilometria do filme de Sn(500nm) é mostrado na Figura 32. É possível observar a rugosidade apresentada pelo filme, também se observa que a espessura média do filme é de 450 nm. Embora o valor médio da espessura seja um pouco menor que o valor nominal, continuaremos adotando o valor nominal, para todas as espessuras.

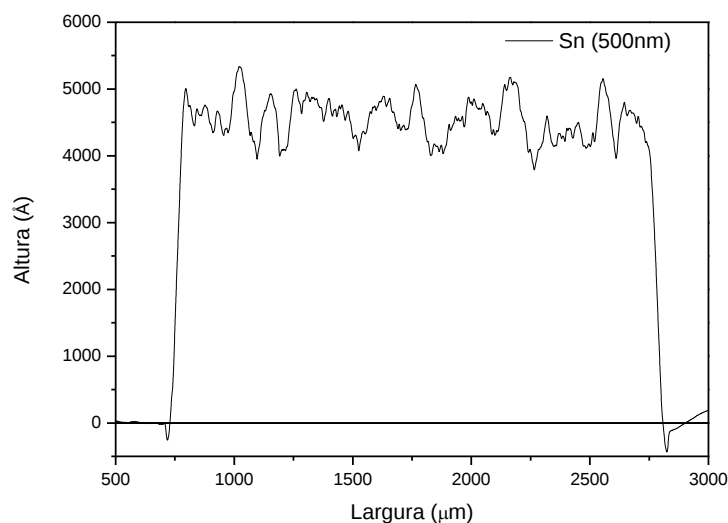


Figura 32: Perfil de perfilometria do filme de Sn(500nm).

6.1.2 Nb

Os difratogramas de raios X dos filmes de Nb com diferentes espessuras foram obtidos no alcance de 25° - 90° e são mostrados na Figura 33. É possível observar picos bem definidos, destacando-se a intensidade do pico (110), com simetria cúbica de corpo centrado e grupo espacial $Im\bar{3}m$ (Nº. 229). Para melhor visualização os difratogramas foram normalizados em relação ao pico de maior intensidade. Exceto para o filme de Nb(500nm), é possível observar a presença de picos entre os ângulos de 50° e 55° , identificado por asteriscos na figura. Na amostra Nb(50nm) o pico é de Si, na amostra Nb(100nm) é de SiO_2 e na amostra Nb(200nm) é o de SiB_6 . A presença destes picos está relacionada aos substratos em que as amostras foram depositadas.

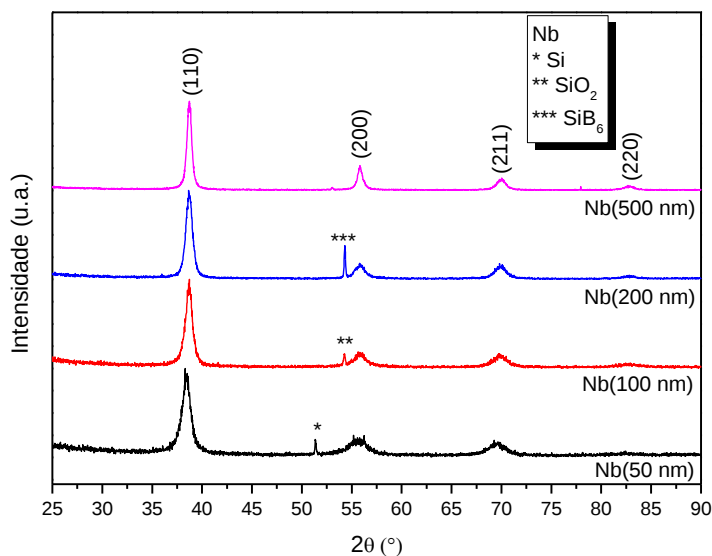


Figura 33: Difratogramas de baixo ângulo dos filmes de Nb com diferentes espessuras.

A Figura 34 apresenta as imagens de MEV dos filmes de Nb(200nm) e Nb(500nm). Nas Figuras 34(a) e 34(b) é possível observar a superfície dos filmes, as imagens indicam que eles são formados por partículas muito pequenas e apresentam baixa rugosidade. O equipamento utilizado não possui resolução suficiente para obter imagens das partículas nem dos filmes com menor espessura, pois estes possuem partículas ainda menores. Na Figura 34(c) é possível observar a seção transversal do filme de Nb(500nm), na parte mais clara e central da imagem. Essa micrografia confirma a espessura e a homogeneidade do filme de Nb(500nm).

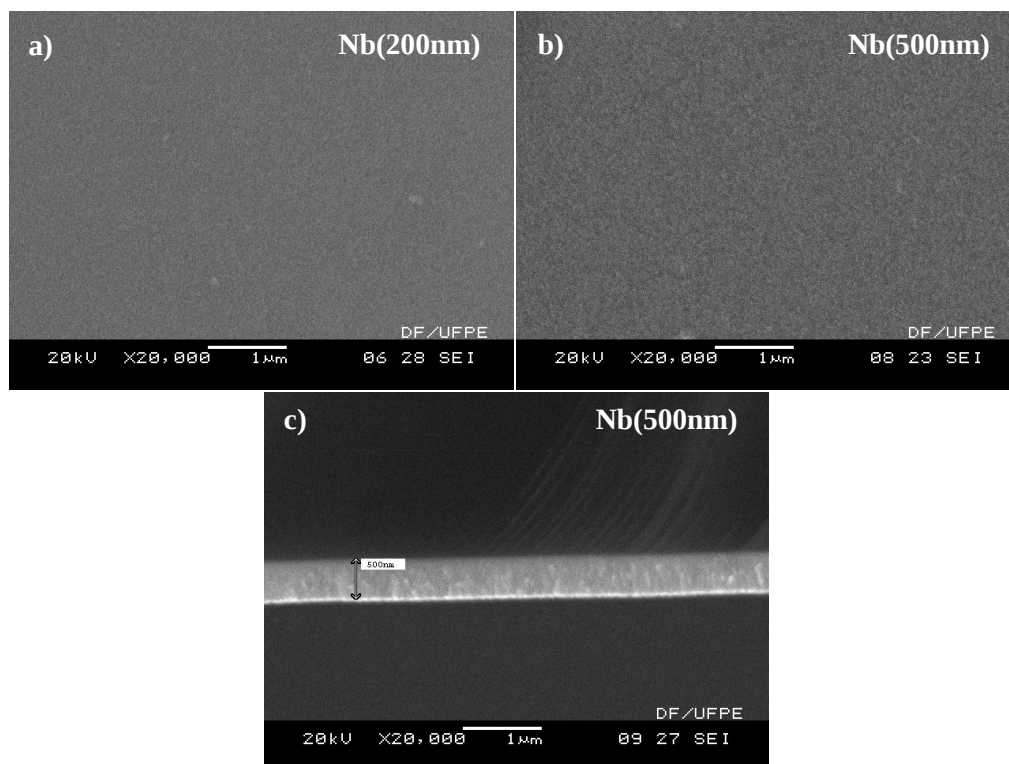


Figura 34: Imagens de MEV dos filmes de a) Nb(100nm) e b) Nb(200nm). d) Seção transversal do filme de Nb(500nm).

As imagens por AFM confirmam a boa qualidade dos filmes de Nb. A Figura 35 apresenta as imagens 2D e 3D dos filmes de Nb(50nm), Nb(100nm) e Nb(200nm). Os filmes apresentam-se bastante homogêneos, com grãos uniformemente distribuídos e bem conectados. Os tamanhos de grãos para estes filmes são inferiores a 15 nm, não apresentando variações relevantes nas diferentes espessuras. A rugosidade, visualizada nas imagens 3D, apresenta valor médio de 0,7 nm, 1,8 nm e 3,6 nm para os filmes de Nb(50nm), Nb(100nm) e Nb(200nm), respectivamente.

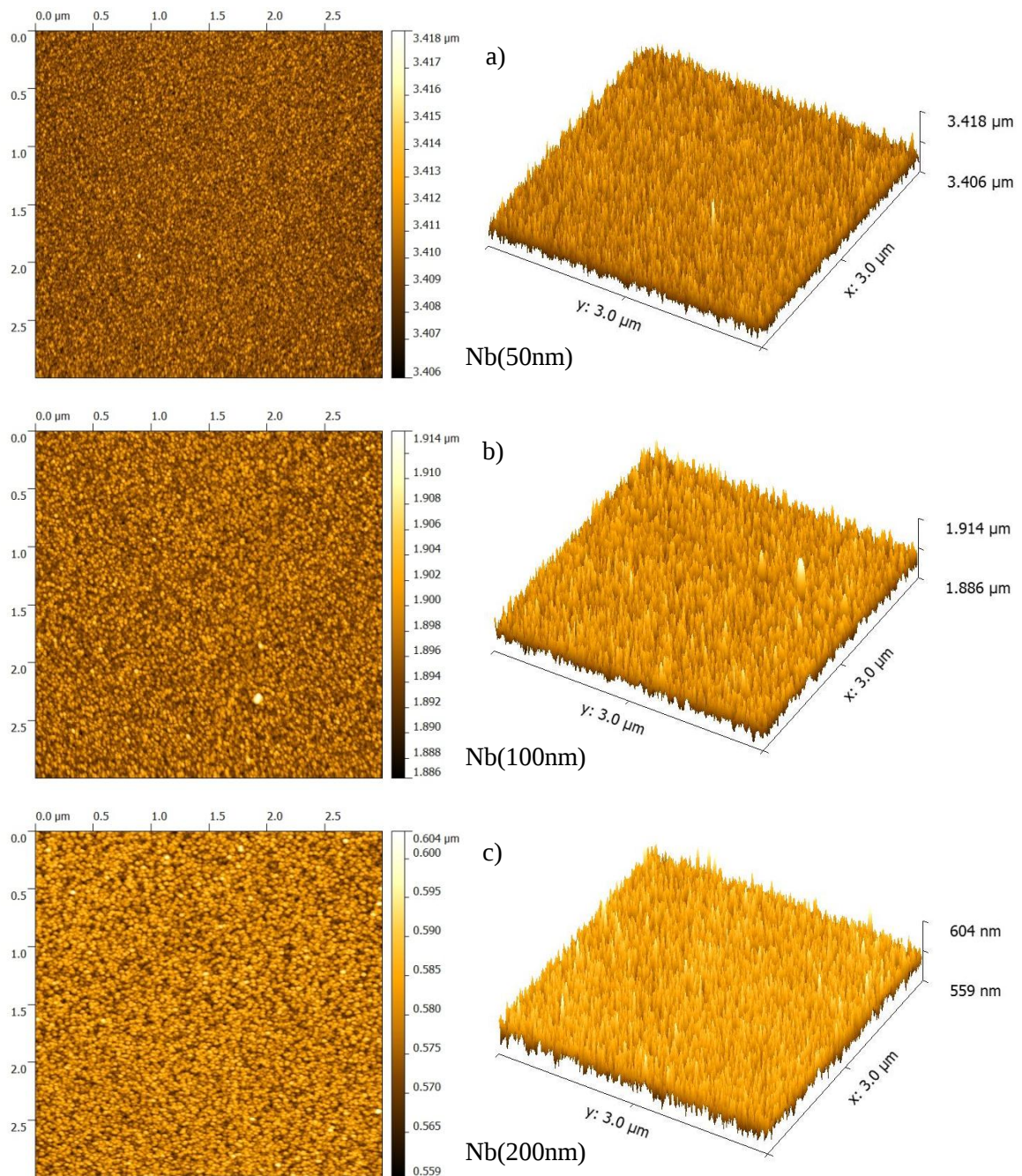


Figura 35: Imagens de AFM dos filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm) e c) Nb(200nm). As imagens à esquerda mostram a morfologia superficial, 2D, enquanto que as imagens à direita mostram a morfologia 3D, destacando a pouca rugosidade dos filmes.

Um dos perfis das medidas de perfilometria para o filme de Nb(500nm) é mostrado na Figura 36. Observa-se que o filme possui espessura de 500 nm e apresenta pouca rugosidade.

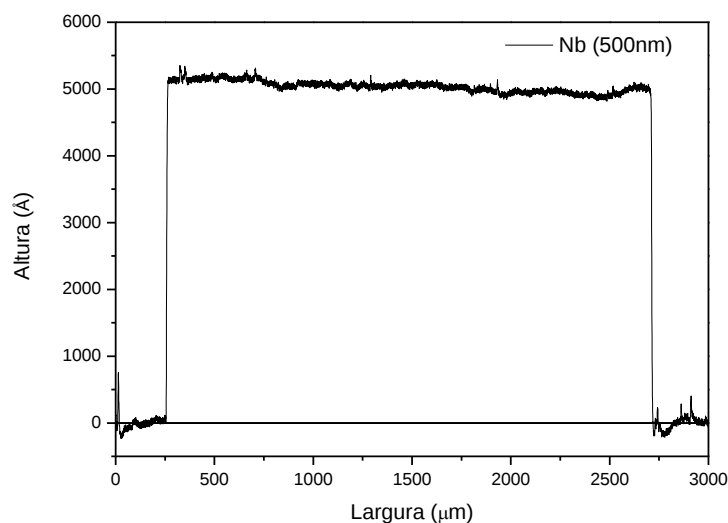


Figura 36: Perfil de perfilometria do filme de Nb(500nm).

6.1.3 Nb/Sn

A Figura 37 apresenta os difratogramas das bicamadas de Nb/Sn para as diferentes espessuras, obtidos entre os ângulos de 25° - 90° . Os gráficos mostram picos bem definidos para os dois materiais, assim como os difratogramas obtidos para os filmes individualmente. Para melhor visualização os difratogramas foram normalizados em relação ao pico de maior intensidade. Na bicamada de Nb(500nm)/Sn(500nm), diferentemente das demais, o pico (200) de Sn possui maior intensidade que o pico mais intenso de Nb, (100), isso pode ser atribuído ao aumento da espessura, uma vez que a medida é feita superficialmente e a profundidade de penetração do feixe pode não ser suficiente para englobar toda a espessura do Nb, camada mais interna. Também é possível observar a presença de picos entre os ângulos de 50° e 55° , identificados por asterisco. Nos dois casos os picos são de SiO_2 .

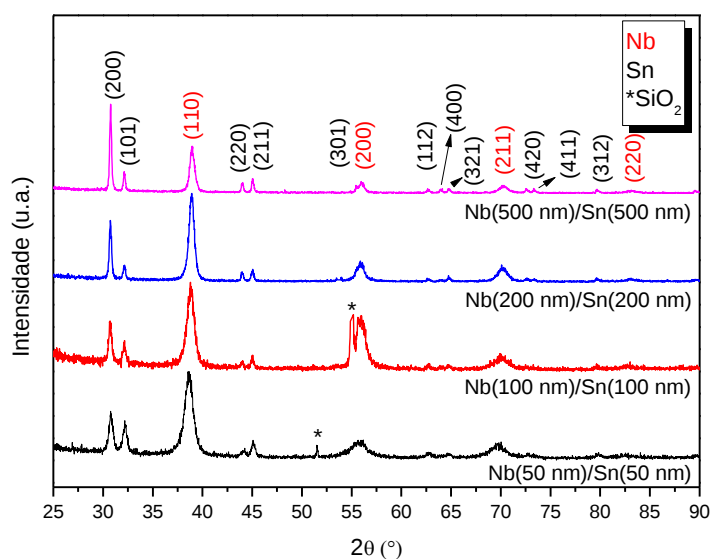


Figura 37: Difratomogramas de baixo ângulo das bicamadas de Nb/Sn com diferentes espessuras.

A morfologia das bicamadas de Nb(100nm)/Sn(100nm), Nb(200nm)/Sn(200nm) e Nb/(500nm)Sn(500nm) foi analisada por MEV, Figuras 38(a), 38(b) e 38(c), respectivamente. Assim como nos filmes de Sn, observa-se na parte mais escura das micrografias uma distribuição homogênea, com pouca porosidade e a formação de grãos maiores isolados sobre a superfície das amostras. É possível observar também que os grãos têm seu tamanho aumentado de acordo com o aumento da espessura das amostras; apresentam também formas e tamanhos aleatórios, podendo, uma de suas dimensões, chegar a $0,65 \mu\text{m}$ e $2,4 \mu\text{m}$ para as bicamadas de Nb(200nm)/Sn(200nm) e Nb(500nm)/Sn(500nm), respectivamente. As medidas foram obtidas utilizando o software de tratamento de imagens ImageJ. A resolução da imagem não permitiu obter o tamanho de grão da amostra de Nb(100nm)/Sn(100nm). Nas imagens de MEV das bicamadas de Nb/Sn, quando comparadas com as imagens de MEV dos filmes de Sn, é possível observar que apresentam grãos menores e mais homogêneos. Isto sugere que o Sn tem melhores condições de crescimento sobre o Nb, quando comparado com o substrato de Si.

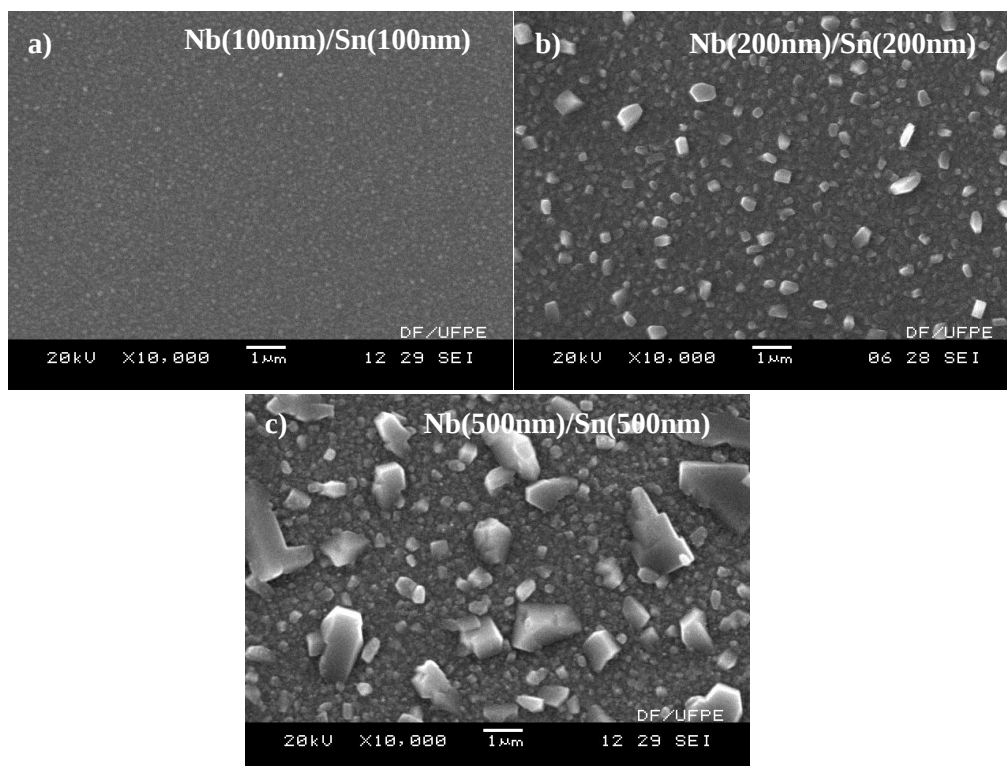


Figura 38: Imagens de MEV das bicamadas de a) Nb(100nm)/Sn(100nm), b) Nb(200nm)/Sn(200nm) e c) Nb(500nm)/Sn(500nm).

A Figura 39 mostra as imagens 2D e 3D obtidas por AFM das bicamadas de Nb(50nm)/Sn(50nm) (Fig. 39(a)), Nb(100nm)/Sn(100nm) (Fig. 39(b)) e Nb(200nm)/Sn(200nm) (Fig. 39(c)). A microestrutura da bicamada de Nb(50nm)/Sn(50nm) apresenta bastante homogeneidade, com grãos uniformemente distribuídos. Os tamanhos de grãos para esta bicamada é de 20 nm, aproximadamente. A rugosidade, visualizada na imagem 3D da Figura 39(a), apresenta um valor médio de 4,9 nm. A bicamada de Nb(100nm)/Sn(100nm) (Fig. 39(b)) também é bastante homogênea, exibindo, porém, tamanho de grãos em torno de 80 nm e rugosidade em torno de 7,1 nm. Já a bicamada de Nb(200nm)/Sn(200nm) apresenta-se menos homogênea com grãos que possuem uma das dimensões com tamanho de 400 nm e rugosidade de 11 nm.

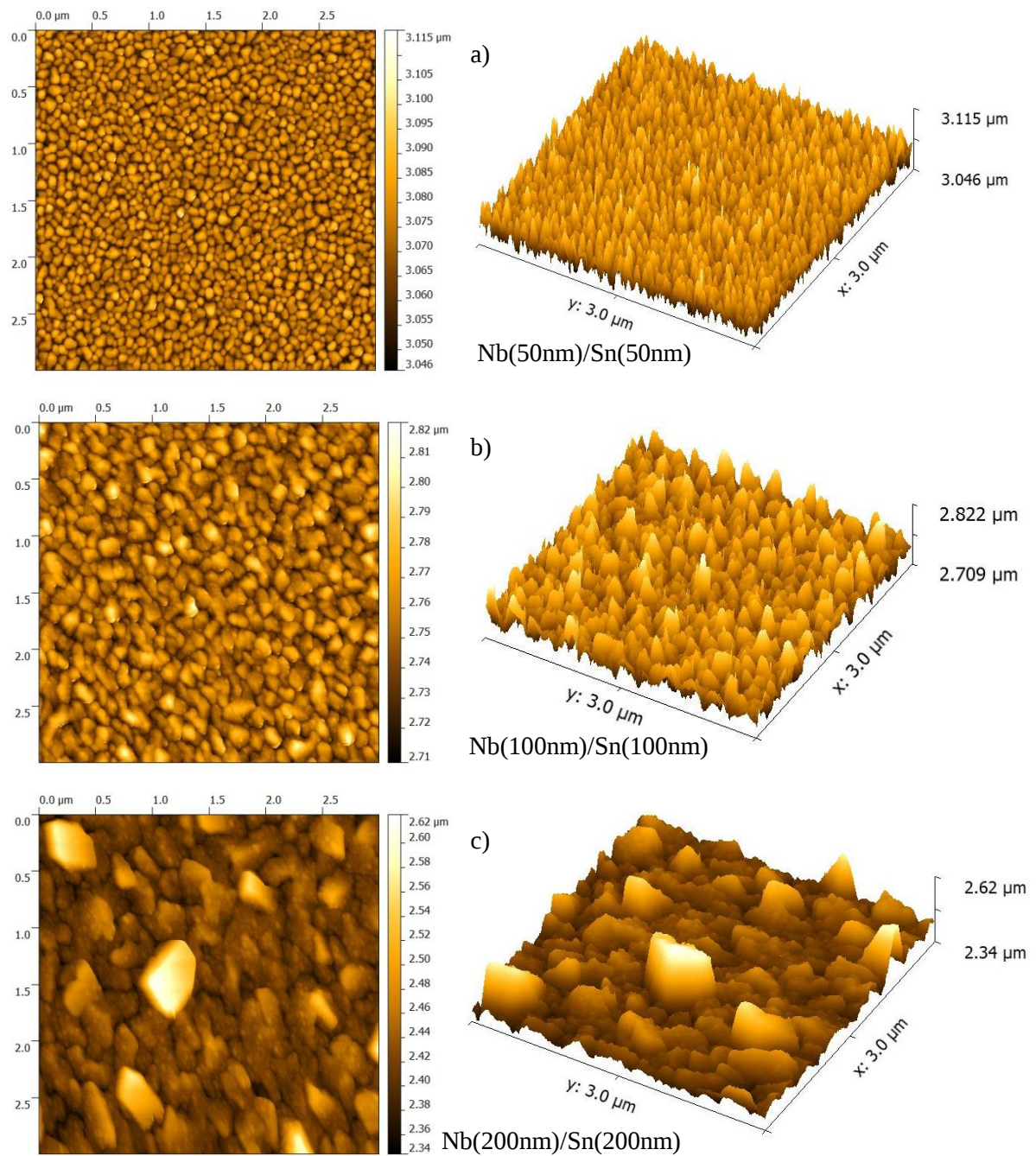


Figura 39: Imagens de AFM das bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm) e c) Nb(200nm)/Sn(200nm). As imagens à esquerda mostram a morfologia superficial, 2D, enquanto que as imagens à direita apresentam a morfologia 3D, destacando a rugosidade das bicamadas.

6.2 Caracterização supercondutora

Um resumo das temperaturas críticas, T_c 's, das amostras estudadas neste capítulo é apresentado na Figura 40(a). As T_c 's foram obtidas a partir das medidas de resistividade em função da temperatura na ausência de campo magnético, como será detalhado nas próximas seções. É possível observar que a temperatura de transição aumenta com o aumento da espessura para as amostras de Nb e Nb/Sn e permanece constante para as amostras de Sn. A mudança na temperatura crítica com relação à espessura, para o Nb, já foi observada nos trabalhos de Gubin e colaboradores [40] e Il'in e colaboradores [39]. Nesses estudos há uma tendência de diminuição na temperatura de transição supercondutora com o decréscimo da espessura dos filmes. As bicamadas de Nb/Sn apresentam T_c 's superiores aos respectivos filmes de referência de Nb, exceto a bicamada Nb(50nm)/Sn(50nm), e todas as T_c 's são superiores à T_c do Sn. A dependência da quantidade de defeitos presentes nas amostras com relação à espessura foi estimada por $\Delta = (RRR - 1)^{-1}$, onde Δ é proporcional a quantidade de defeitos na amostra [10] e RRR é a razão de resistividade residual. RRR é obtida dividindo o valor da resistência a temperatura ambiente pelo valor da resistência próxima a temperatura de transição, os valores de RRR são mostrados na Figura 40(b). Na Figura 40(c) é possível observar a dependência do parâmetro Δ com a espessura para todos os sistemas estudados. Os valores encontrados mostram que os filmes de Nb apresentam maior densidade de defeitos que as bicamadas de Nb/Sn, com exceção da bicamada Nb(50nm)/Sn(50nm), isto explica as diferenças na T_c . Sacépé [125] e colaboradores observaram a redução da temperatura crítica com o aumento da desordem em filmes de TiN.

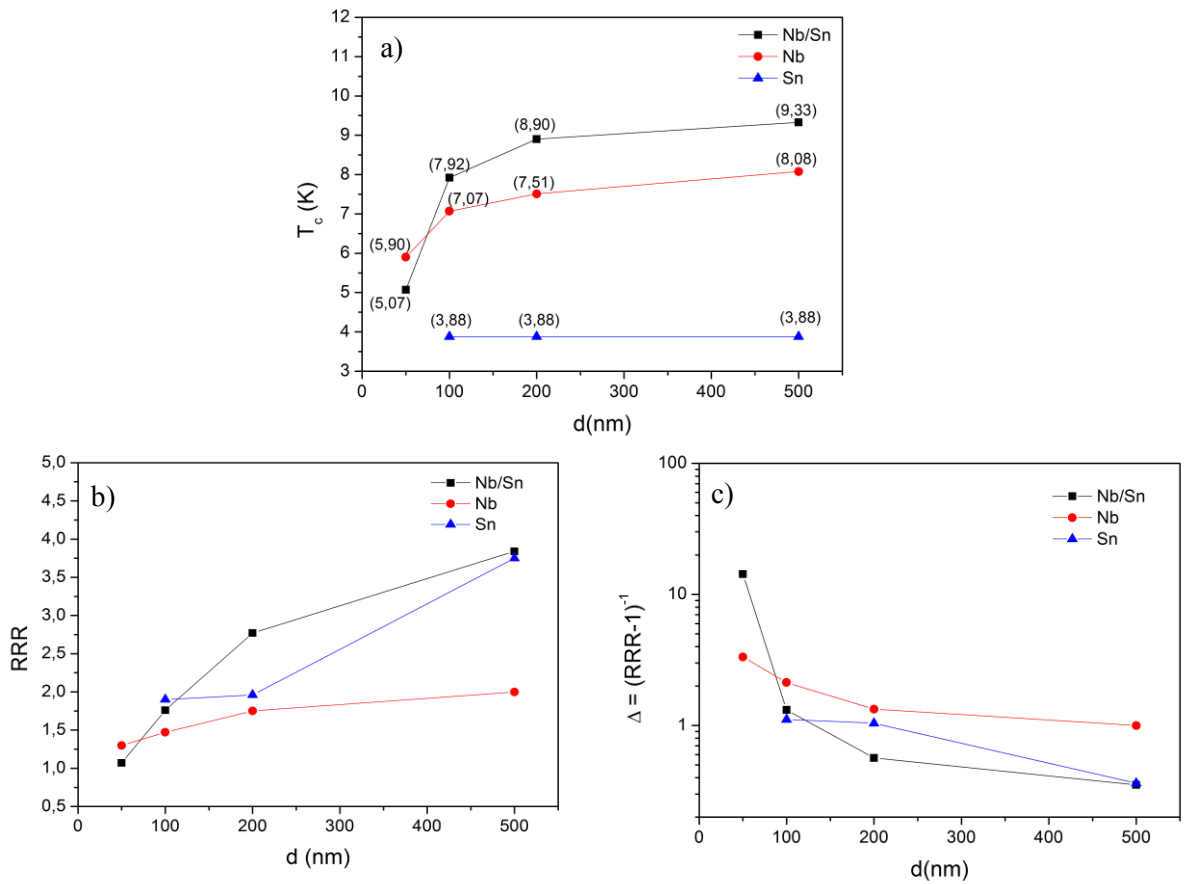


Figura 40: a) Transição supercondutora na ausência de campo magnético aplicado, b) razão da resistividade residual e c) dependência do parâmetro Δ com a espessura das amostras de Sn, Nb e Nb/Sn.

6.2.1 Sn

A Figura 41 exibe a resistividade normalizada em função da temperatura, ρ_{nT} , sem campo magnético aplicado, para todos os filmes de Sn, exceto para o filme de Sn(50nm) que não foi possível obter medidas elétricas. A temperatura crítica, T_c , foi obtida tomando-se a derivada de ρ_{nT} em relação à T . Observa-se que T_c não é dependente da espessura e, como mostrado nos detalhes da Figura 41, tem valor de 3,88 K. Esse valor é próximo ao esperado para o Sn volumétrico, como mostrado na Tabela 4, indicando boa qualidade dos filmes. Valores de temperaturas críticas maiores que a T_c do Sn volumétrico são esperados devido ao fraco acoplamento elétron-fônon [36]. Também é observado um segundo pico nas derivadas

de ρ_{nT} e que a temperatura em que ocorre o segundo pico se desloca com o aumento da espessura dos filmes e fica próxima da temperatura crítica encontrada de 3,88 K.

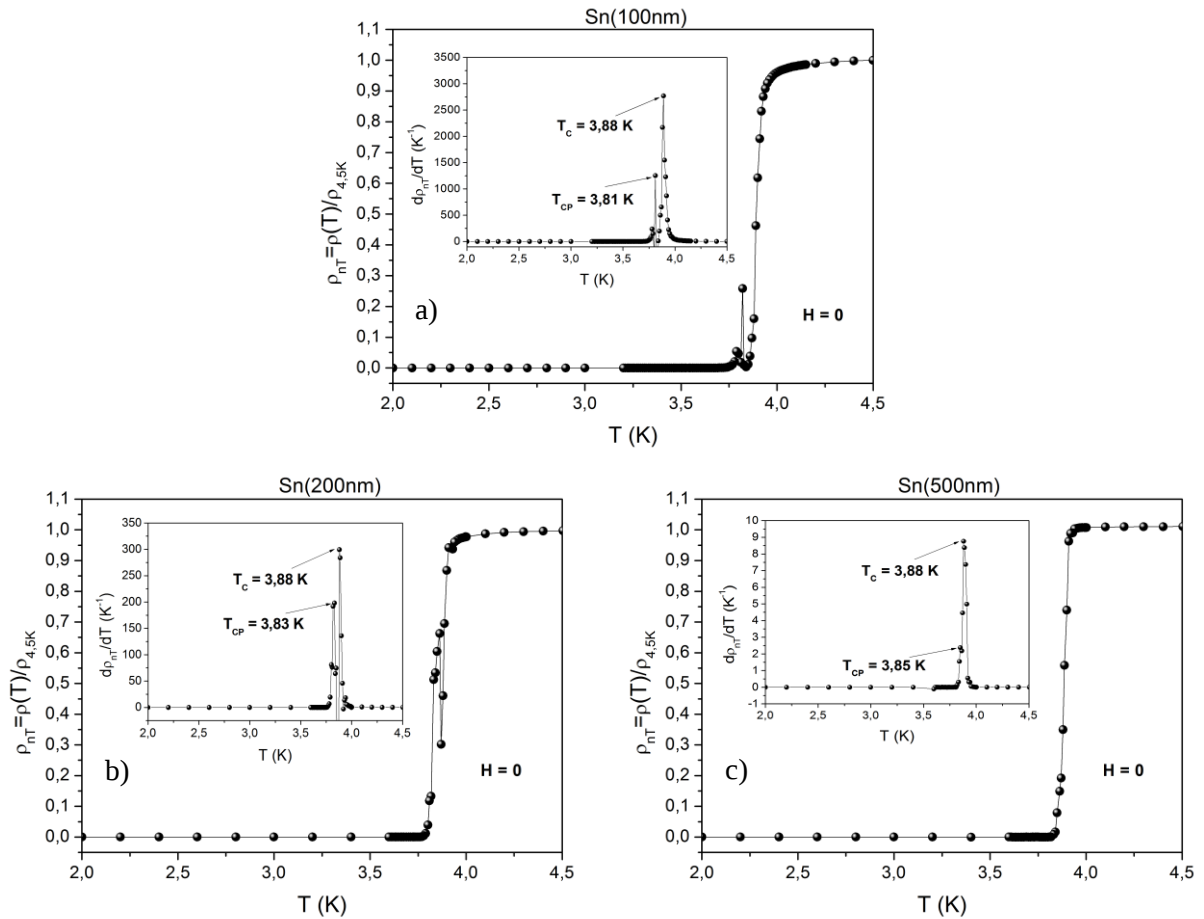


Figura 41: Resistividade normalizada pelo valor da resistividade em 4,5 K, $\rho_{4,5K}$, em função da temperatura na ausência de campo magnético para o filme de a) Sn(100nm), b) Sn(200nm) e c) Sn(500nm). Os detalhes mostram a derivada da resistividade em função da temperatura, de onde é obtida a temperatura crítica dos filmes.

Curvas de ρ_{nT} , com diferentes campos aplicados perpendicularmente aos filmes, são mostradas na Figura 42. Os filmes de Sn(100nm) e Sn(200nm), Figuras 42(a) e 42(b), respectivamente, apresentam comportamento anômalo em que um segundo pico é observado logo após a queda da resistividade abaixo de T_c e suprimido com o aumento do campo aplicado. Essa anomalia pode ser uma consequência da granularidade das amostras. O filme de Sn(500nm), Figura 42(c), não apresenta tal característica para medidas com campo magnético aplicado.

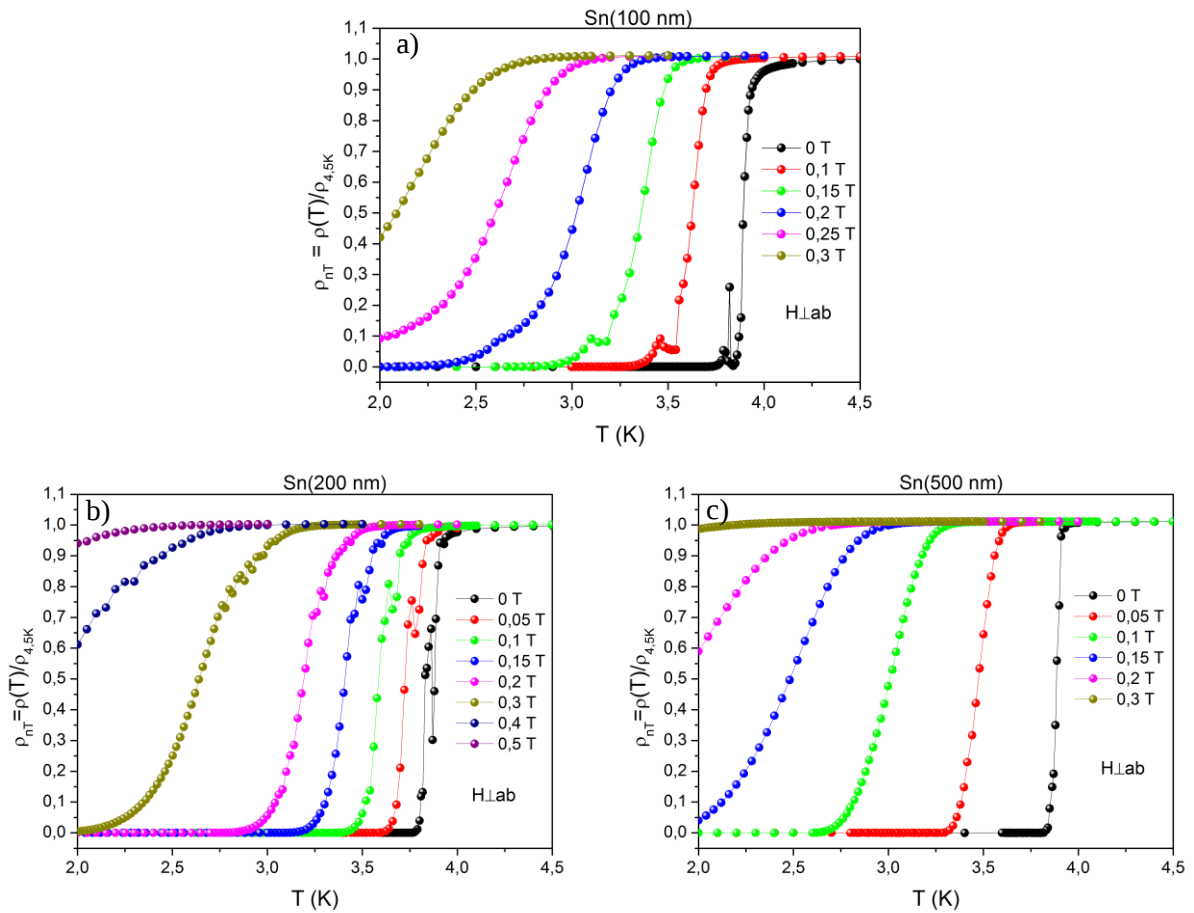


Figura 42: Resistividade normalizada pelo valor de $\rho_{4,5K}$ em função da temperatura, com diversos campos magnéticos aplicados perpendicular ao plano, para o filme de a) Sn(100nm), b) Sn(200nm) e c) Sn(500nm).

Na Figura 43 é possível observar a magnetoresistividade normalizada, ρ_{nH} , para diversos valores de temperatura, com campo aplicado na orientação perpendicular ao plano, dos filmes de Sn(100nm), Sn(200nm) e Sn(500nm). Os filmes apresentam um alargamento na região de transição com o aumento do campo aplicado. Uma anomalia, semelhante ao que foi observada nas medidas de ρ_{nT} , é observada apenas na amostra de Sn(100nm) para temperaturas maiores que 2,4 K.

A Figura 44 apresenta a magnetoresistividade normalizada para diversos valores de temperatura, com campo aplicado paralelo ao plano, dos filmes de Sn(200nm) e Sn(500nm). Observa-se que o comportamento das transições não difere do apresentado no caso perpendicular para o intervalo de campo estudado.

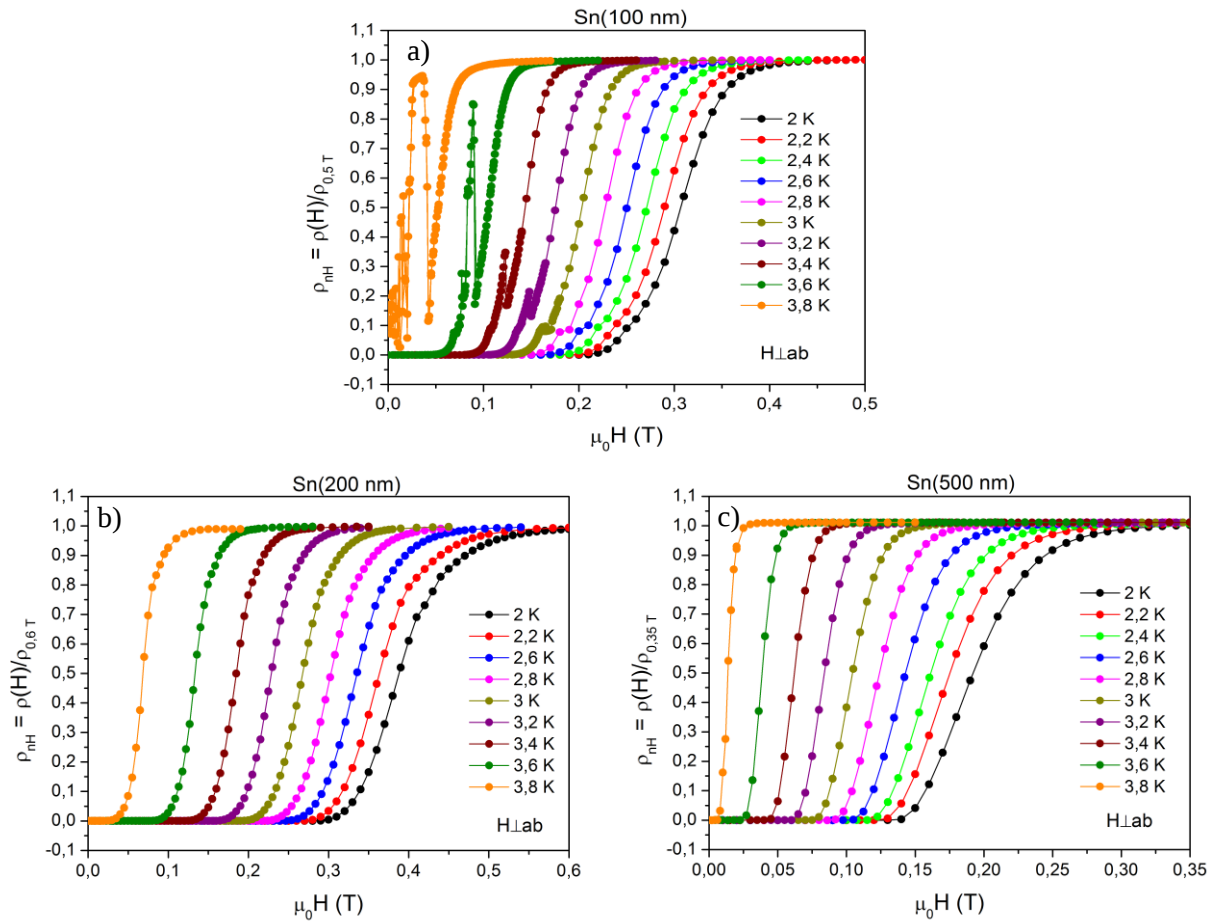


Figura 43: Magnetoresistividade normalizada para diversos valores de temperatura, com campo aplicado perpendicular ao plano, dos filmes de a) Sn(100nm), b) Sn(200nm) e c) Sn(500nm).

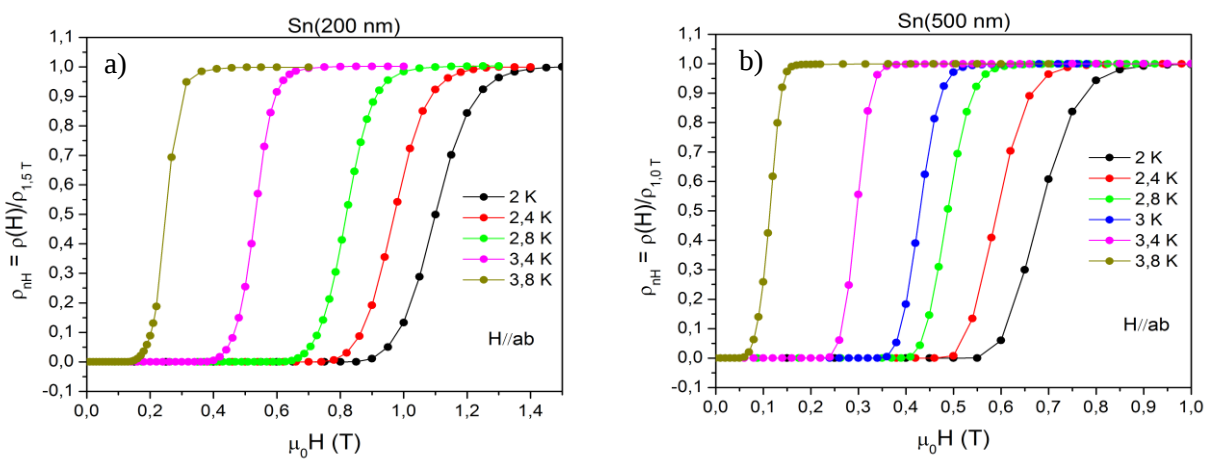


Figura 44: Magnetoresistividade normalizada para diversos valores de temperatura, com campo aplicado paralelo ao plano, dos filmes de a) Sn(200nm) e b) Sn(500nm).

6.2.2 Nb

Na Figura 45 é possível observar as curvas ρ_{nT} para os filmes de Nb, realizadas com campo nulo. A temperatura crítica, T_C , foi obtida tomando-se a derivada de ρ_{nT} em relação a T. Observa-se que a T_C aumenta com o aumento da espessura dos filmes. Assim, as T_C 's são 5,90 K; 7,07 K; 7,51 K e 8,08 K para os filmes de Nb(50nm), Nb(100nm), Nb(200nm) e Nb(500nm), respectivamente, como pode ser observado na Figura 45. Embora ocorra o aumento de T_C com o aumento da espessura, o filme de Nb(500nm) não apresenta T_C igual ao material volumétrico. Foi observado que quando exposto ao ar em condições ambiente forma-se, sobre o filme, uma monocamada de NbO e até 20 Å de Nb₂O₅ [34]. A nucleação de Nb₂O₅ induz tensões na interface devido ao aumento de volume e a presença de oxigênio influencia as propriedades de condução do Nb, provocando a redução da temperatura de transição [126,127].

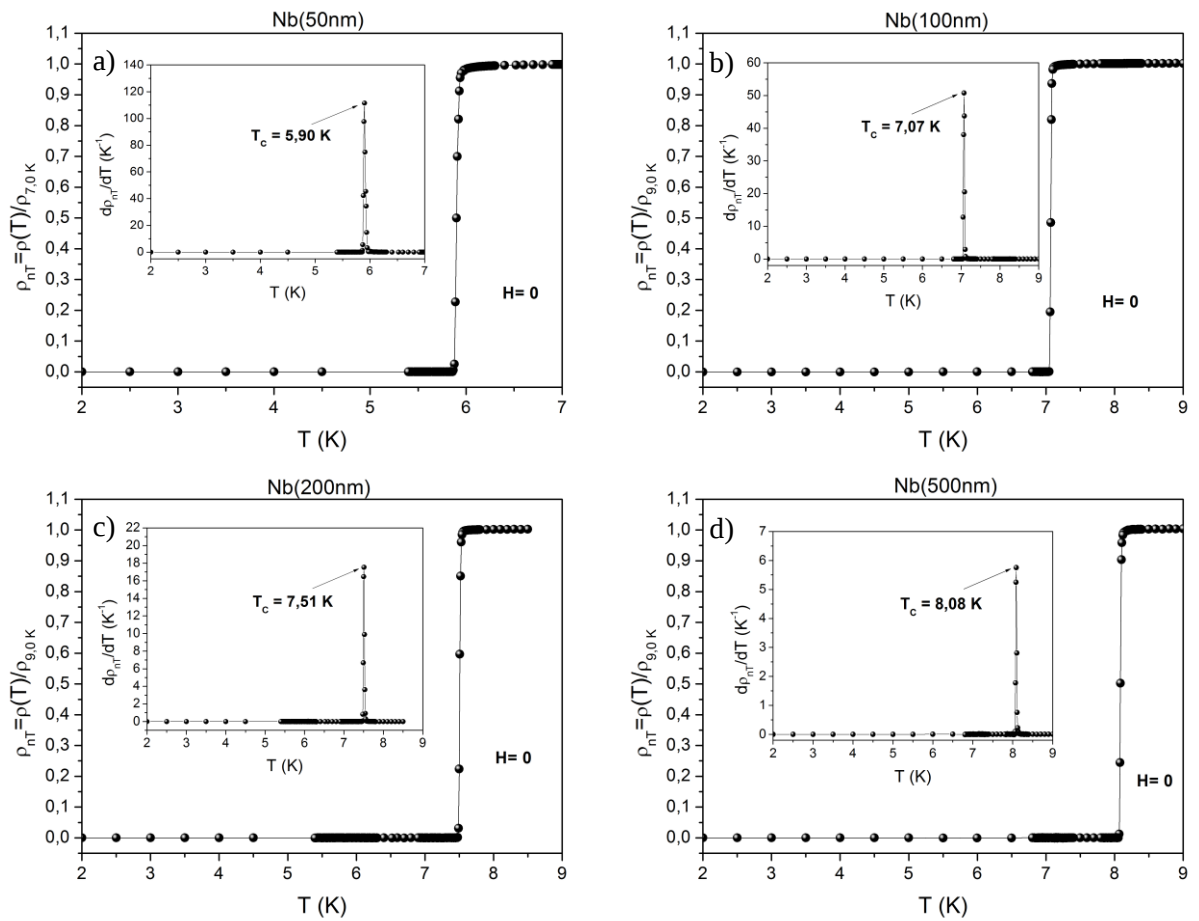


Figura 45: Resistividade normalizada, em função da temperatura, para os filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) na ausência de campo aplicado. As temperaturas críticas foram obtidas a partir das derivadas da resistividade como função da temperatura, como mostram os detalhes.

O estudo de ρ_{nT} com diferentes campos aplicados perpendicularmente aos filmes foi realizado e os resultados obtidos são apresentados na Figura 46. O intervalo de campo magnético utilizado variou para cada filme estudado. Verifica-se que filmes menos espessos apresentam menor campo crítico superior que os mais espessos. As transições, em todos os casos, iniciam-se abruptas e tornam-se levemente alargadas com o aumento do campo magnético.

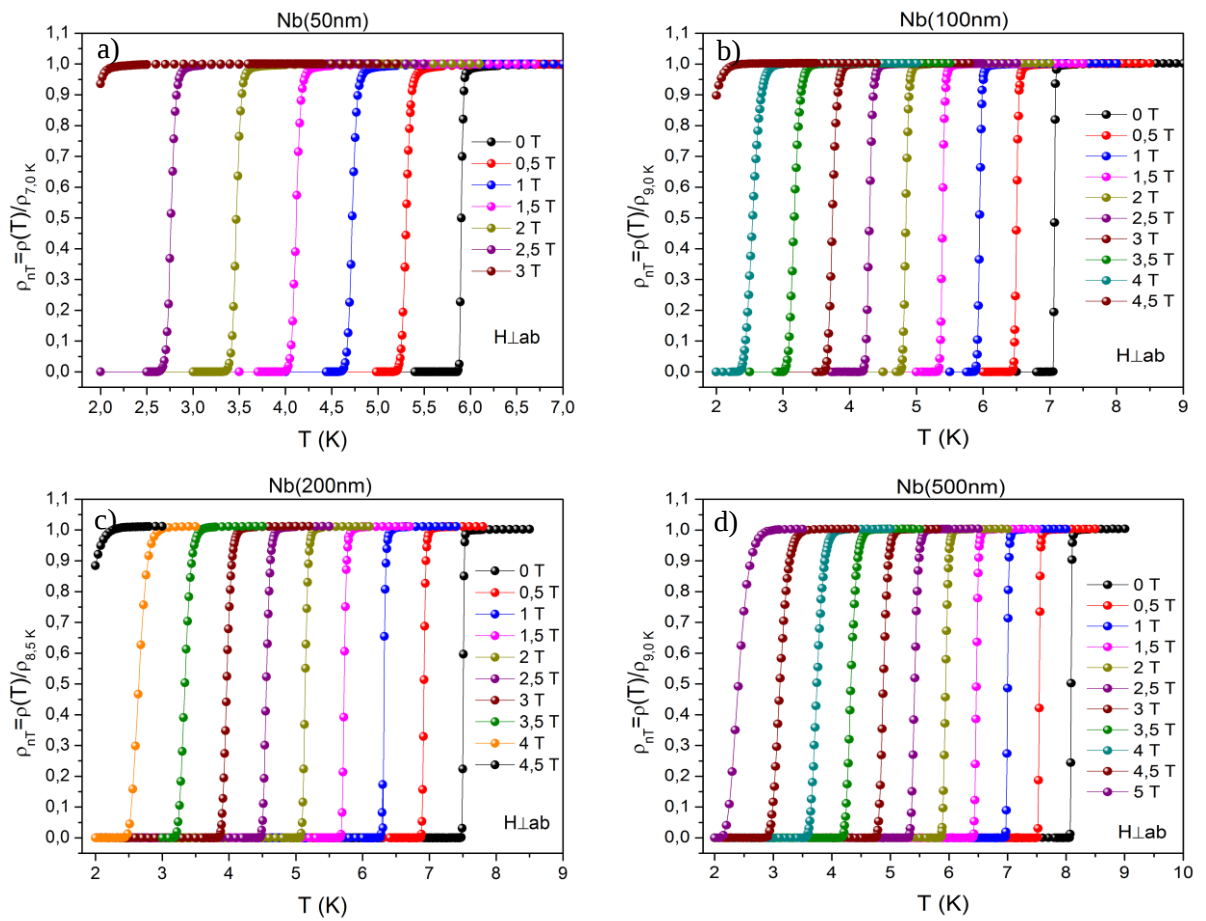


Figura 46: Resistividade normalizada, com campo perpendicular, em função da temperatura para os filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) com diversos campos aplicados.

A magnetoresistividade normalizada para os filmes de Nb, com campo aplicado perpendicular aos filmes, é apresentada na Figura 47. Assim como as medidas de resistividade, as medidas de magnetoresistividade com campo perpendicular apresentam transições abruptas e convencionais.

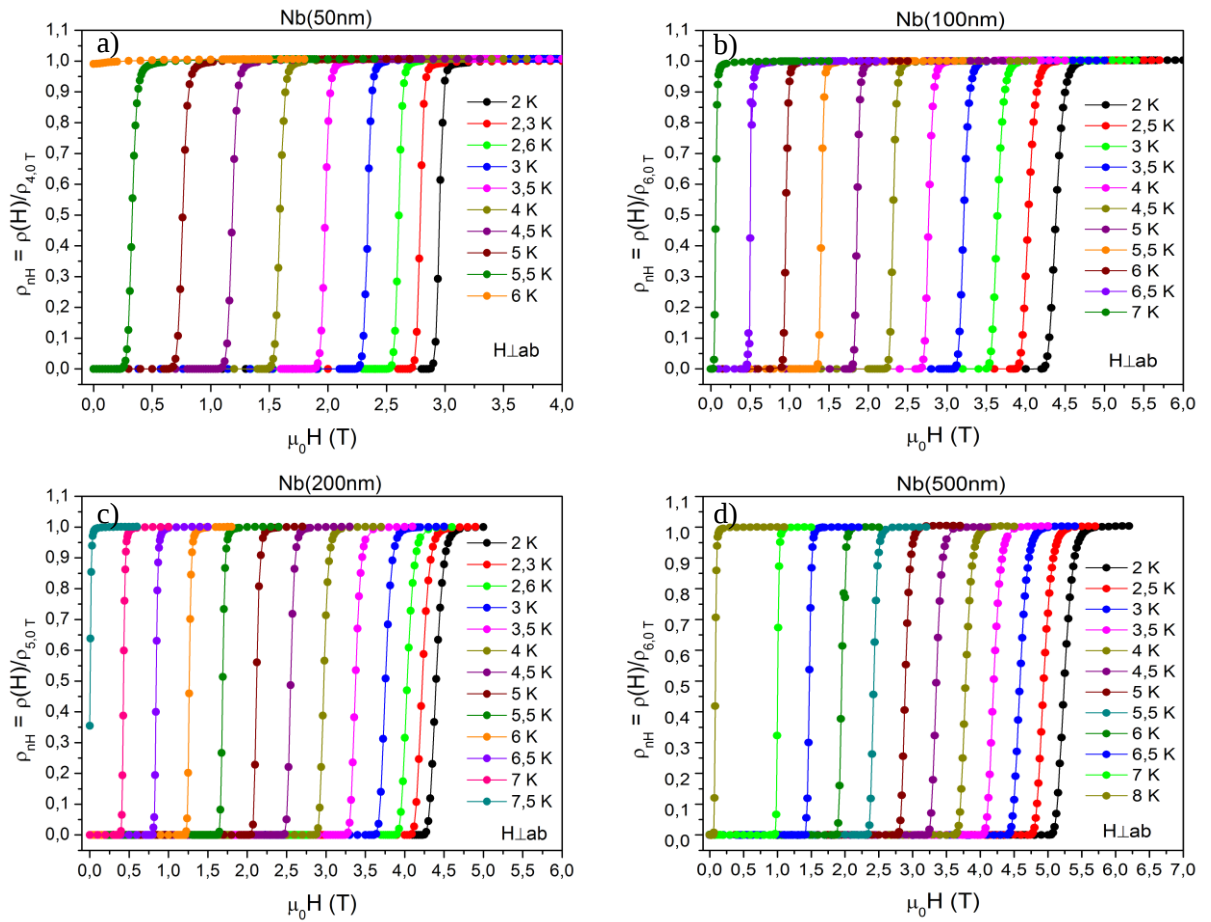


Figura 47: Magnetoresistividade perpendicular normalizada dos filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) para diversos valores de temperatura.

A magnetoresistividade com campo paralelo também apresenta transições estreitas e sem a presença de anomalias para todos os filmes de Nb, como pode ser verificado na Figura 48.

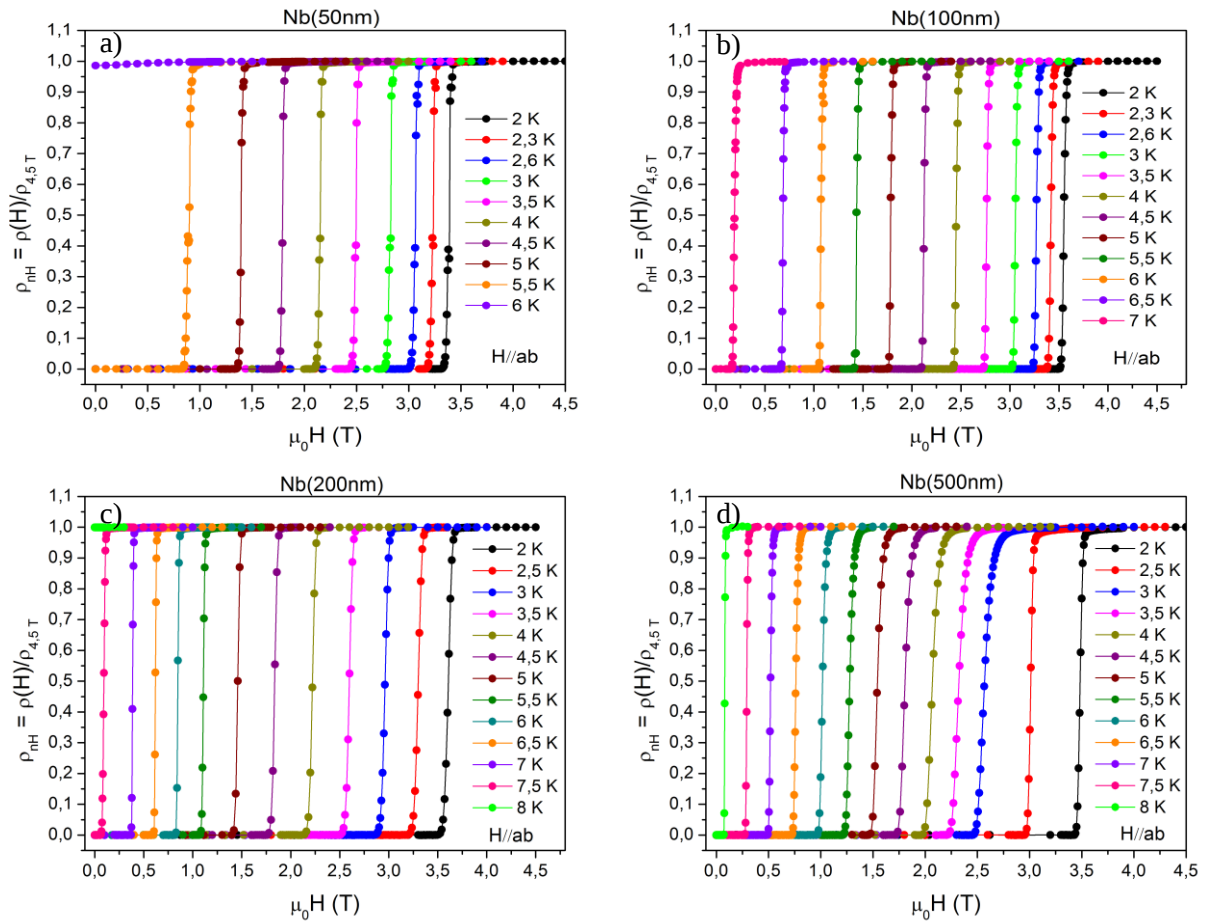


Figura 48: Magnetoresistividade paralela normalizada dos filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) para diversos valores de temperatura.

6.2.3 Nb/Sn

A Figura 49 apresenta as transições para as bicamadas de Nb/Sn. Assim como para os filmes de Nb, a temperatura crítica aumenta com o aumento da espessura das bicamadas. Apenas uma transição é verificada para cada bicamada e as T_c 's são maiores que as T_c 's dos respectivos filmes de Nb, com exceção da bicamada Nb(50nm)/Sn(50nm) onde a supercondutividade ocorre abaixo de 5,9 K (T_c do Nb(50nm)).

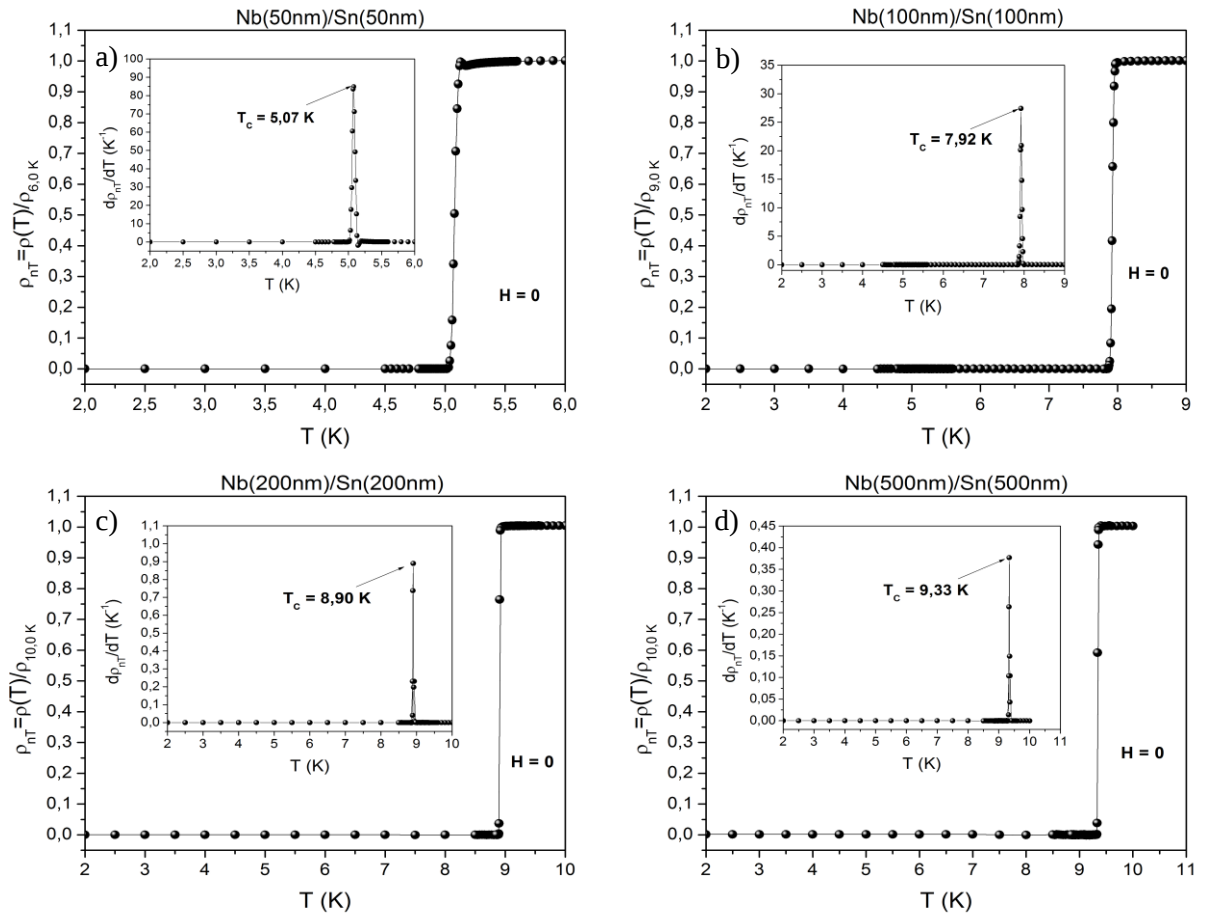


Figura 49: Resistividade normalizada, em função da temperatura, para as bicamadas a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) na ausência de campo aplicado. As temperaturas críticas foram obtidas a partir das derivadas da resistividade em função da temperatura, como mostram os detalhes.

As curvas ρ_{nT} com campo aplicado na direção perpendicular são mostradas na Figura 50. O comportamento das curvas para as bicamadas é convencional.

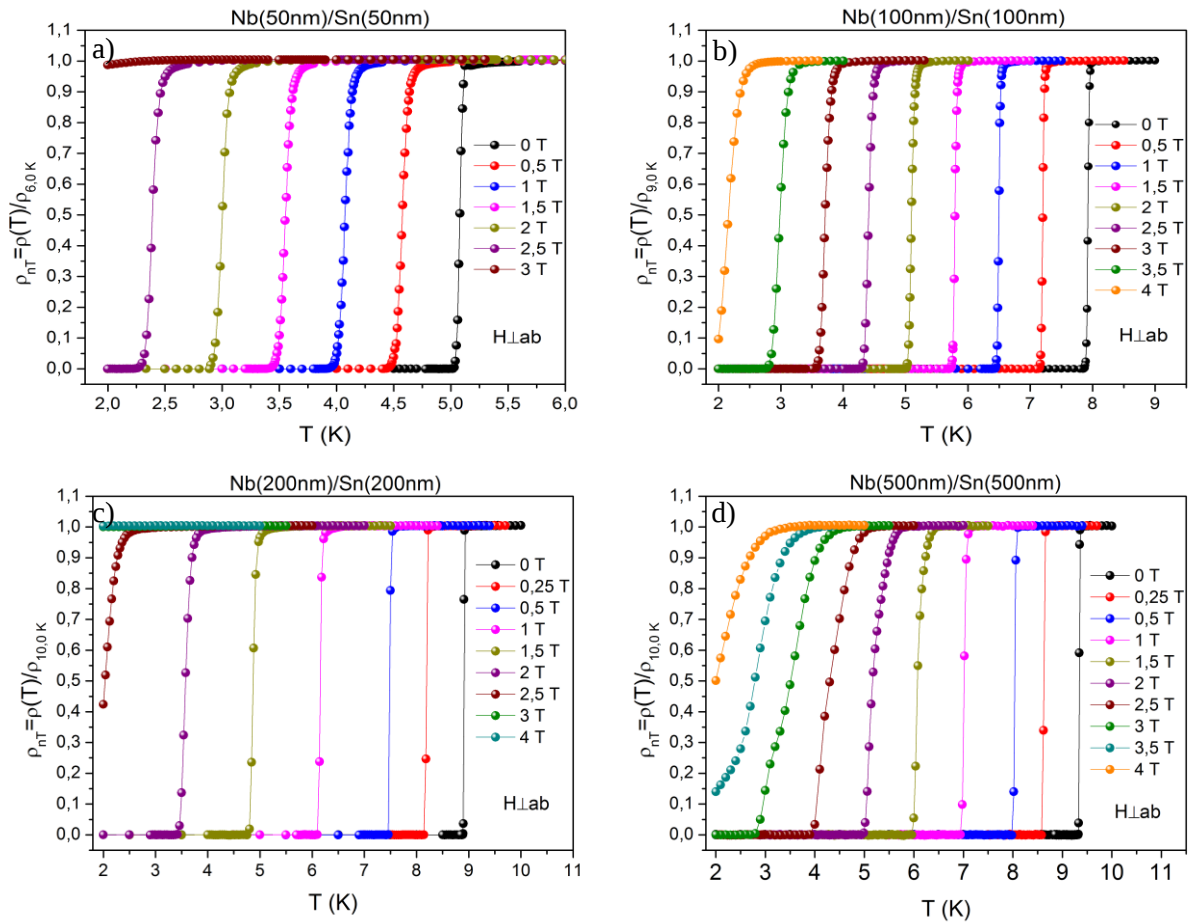


Figura 50: Resistividade normalizada, com campo perpendicular, em função da temperatura, para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) para diversos campos aplicados.

As medidas de resistividade normalizada em função da temperatura, com campo aplicado na direção paralela, são mostradas na Figura 51. O comportamento das curvas para as bicamadas é convencional, não apresentando nenhuma anomalia ou mudança com o aumento do campo magnético aplicado.

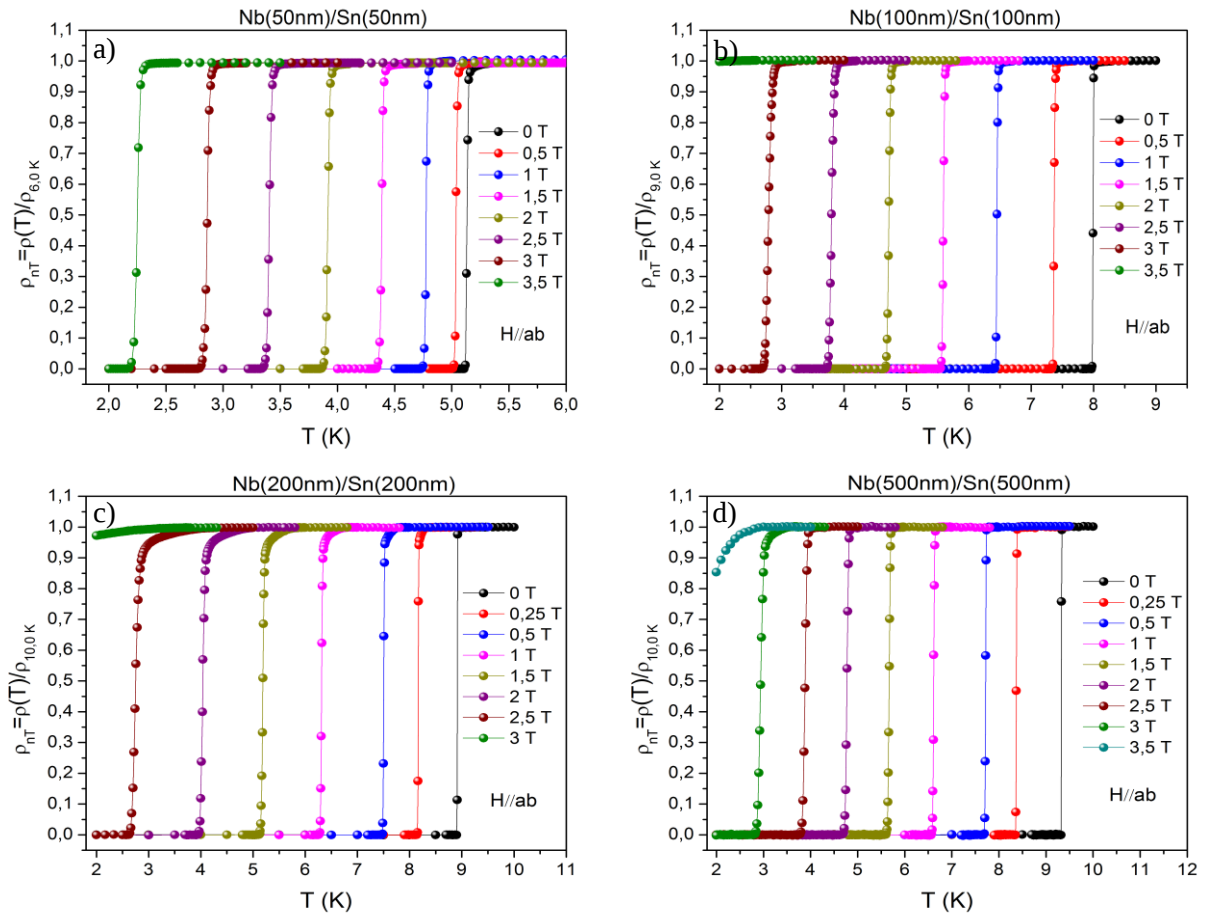


Figura 51: Resistividade normalizada, com campo paralelo, em função da temperatura, para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) para diversos campos aplicados.

As medidas de magnetoresistividade, com campo aplicado na direção perpendicular, são mostradas na Figura 52. O comportamento das curvas para as bicamadas de Nb(50nm)/Sn(50nm), Nb(100nm)/Sn(100nm) e Nb(200nm)/Sn(200nm) é convencional, (Figura 52(a), 52(b) e 52(c)), isto é, não apresentam nenhuma anomalia. Já a bicamada de Nb(500nm)/Sn(500nm), Figura 52(d), apresenta transições mais alargadas e não convencionais nas curvas medidas entre 2 K e 4 K.

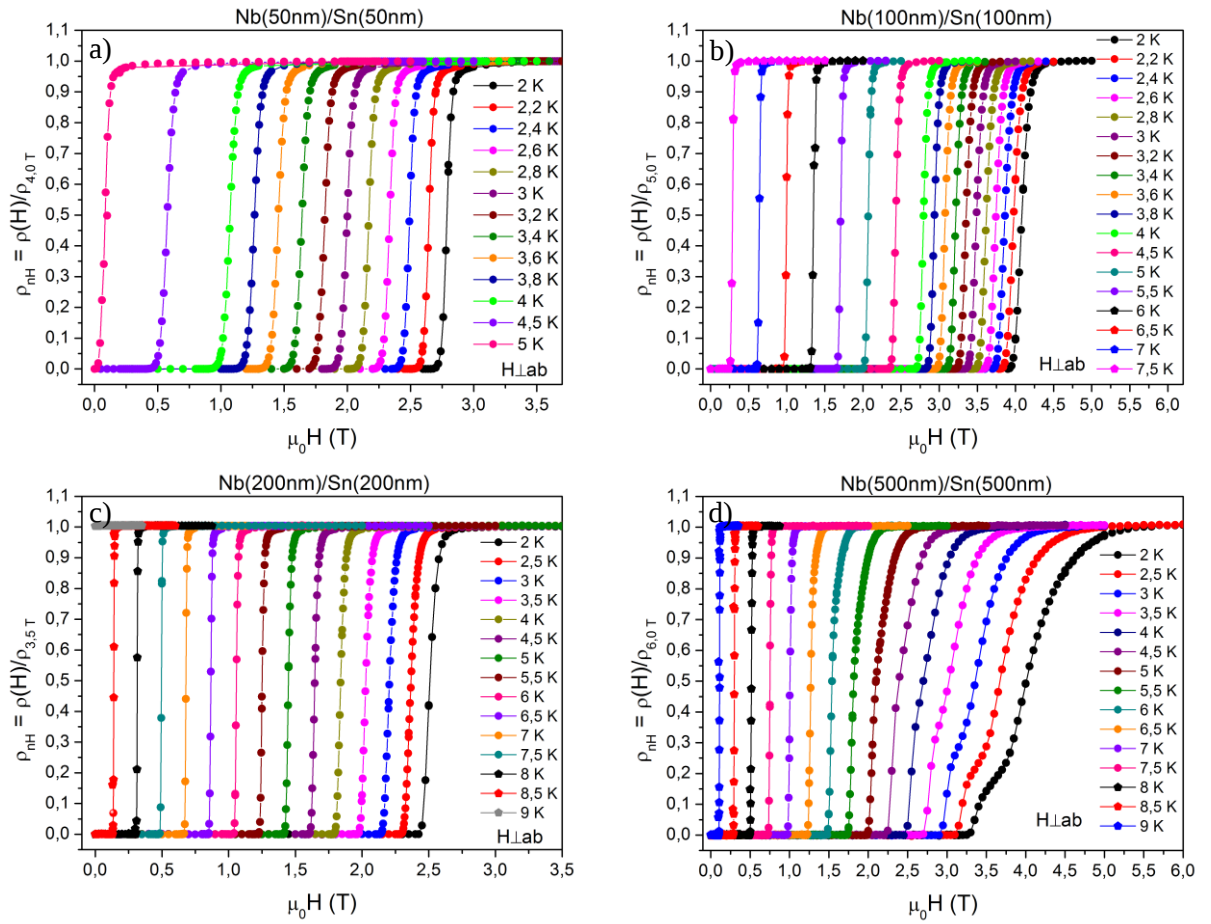


Figura 52: Magnetoresistividade perpendicular normalizada das bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) para diversos valores de temperatura.

As medidas de magnetoresistividade, com campo aplicado na direção paralela, são mostradas na Figura 53. O comportamento das curvas para as bicamadas é convencional, não apresentando nenhuma anomalia.

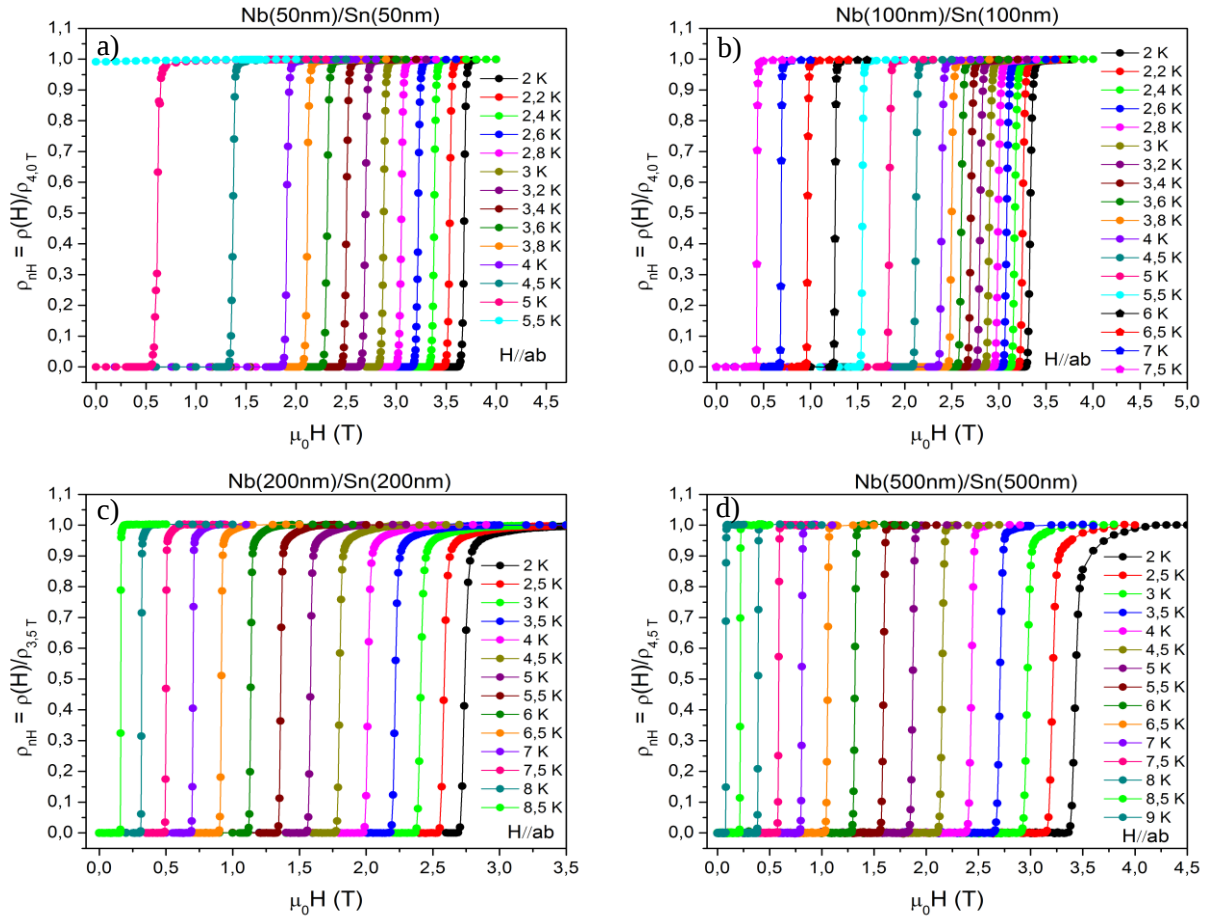


Figura 53: Magnetoresistividade paralela normalizada das bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) para diversos valores de temperatura.

As medidas de magnetização em função da temperatura para as bicamadas, com campo aplicado perpendicular e com magnitude de 1 mT, são mostradas na Figura 54. A bicamada de Nb(50nm)/Sn(50nm) apresenta um *jump* em 2,5 K, na curva ZFC. Esse *jump* é uma resposta da entrada de vórtices individuais dentro da amostra [26]. As demais bicamadas apresentam comportamento convencional. As temperaturas de transição obtidas das curvas MxT estão de acordo com os dados obtidos das medidas de resistividade em função da temperatura.

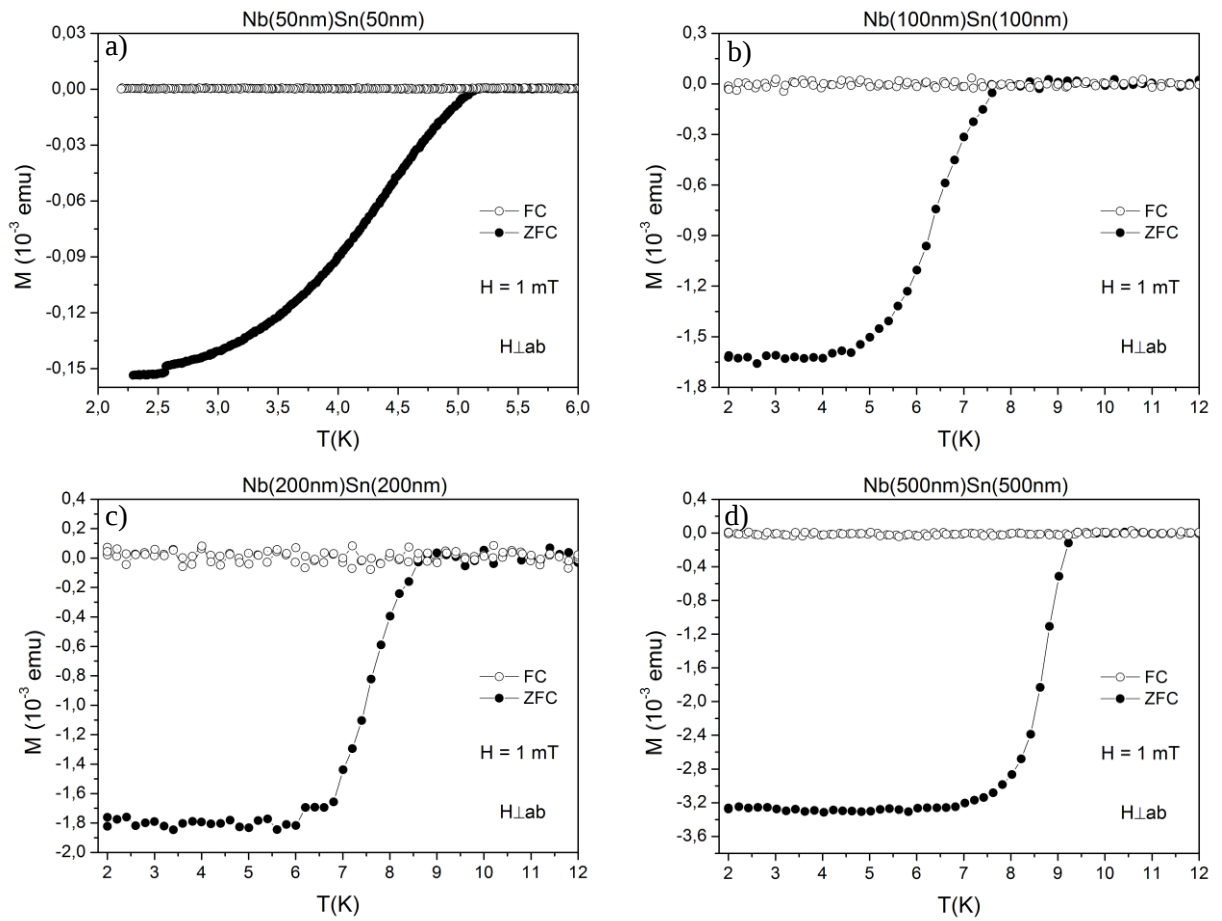


Figura 54: Magnetização em função da temperatura para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm). O campo magnético foi aplicado perpendicular ao plano.

As curvas de histerese para as bicamadas de Nb/Sn, em 3K para Nb(50nm)/Sn(50nm) e em 5 K para as demais, são apresentadas na Figura 55. Forte contribuição diamagnética é observada nas curvas das Figuras 55(a), 55(b) e 55(c), possivelmente correspondendo ao diamagnetismo do substrato de Si [128]. Na curva de histerese mostrada na Figura 55(d) é possível observar *flux jumps* para campos menores que 0,5 T, nessa região a magnetização $|M|$ da amostra diminui. Esses *jumps* representam entradas repentinas de fluxo magnético no interior da amostra e são atribuídos a instabilidades termomagnéticas.

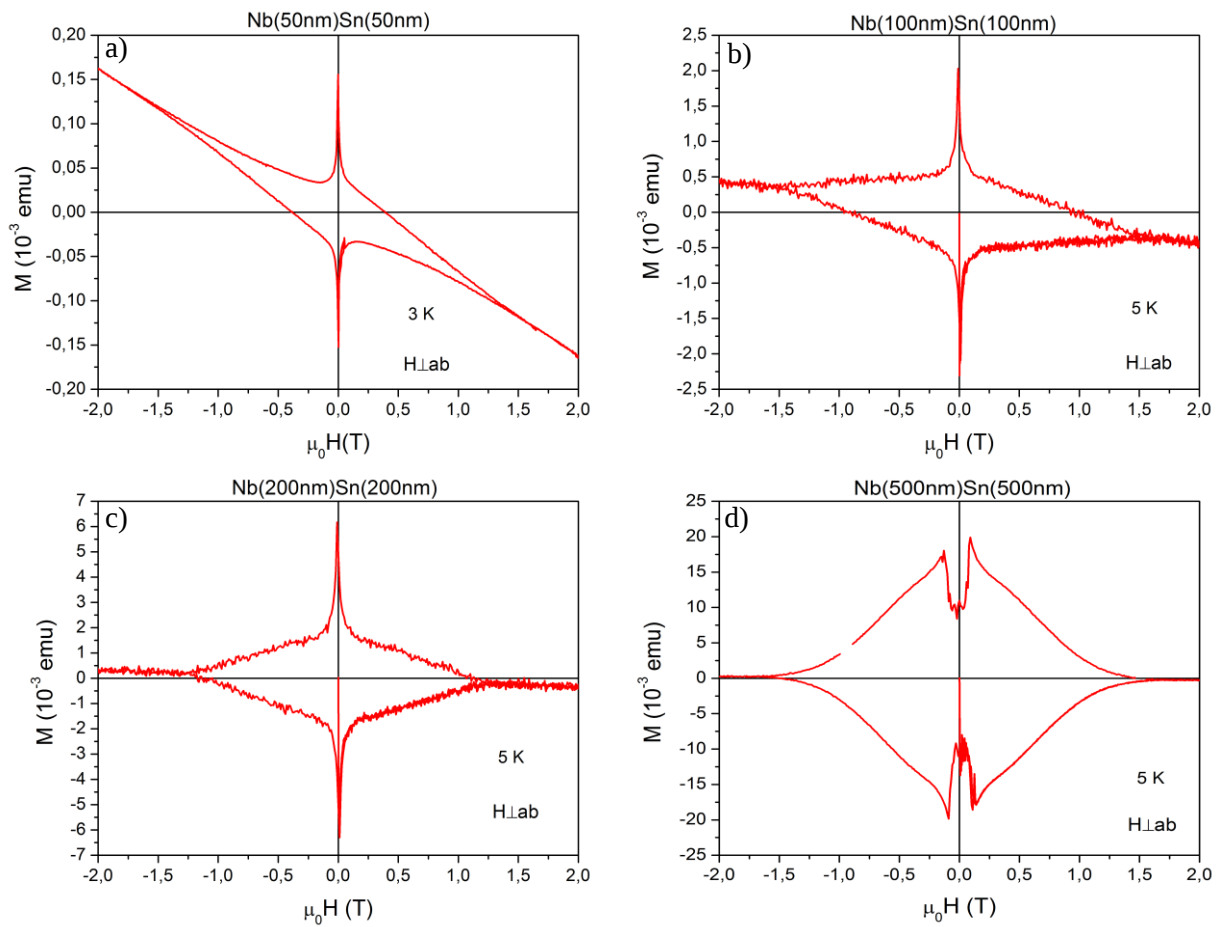


Figura 55: Curvas de histerese para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm). O campo magnético foi aplicado perpendicular ao plano.

O primeiro ramo da curva de histerese para as bicamadas em diversas temperaturas é mostrado na Figura 56. É possível observar a presença de *flux jumps* na medida em 2,2 K para a bicamada de Nb(50nm)/Sn(50nm). As bicamadas de Nb(100nm)/Sn(100nm), Nb(200nm)/Sn(200nm) e Nb(500nm)/Sn(500nm) apresentam *flux jumps* para temperaturas menores e iguais a 5,5 K, 3,5 K e 6K, respectivamente.

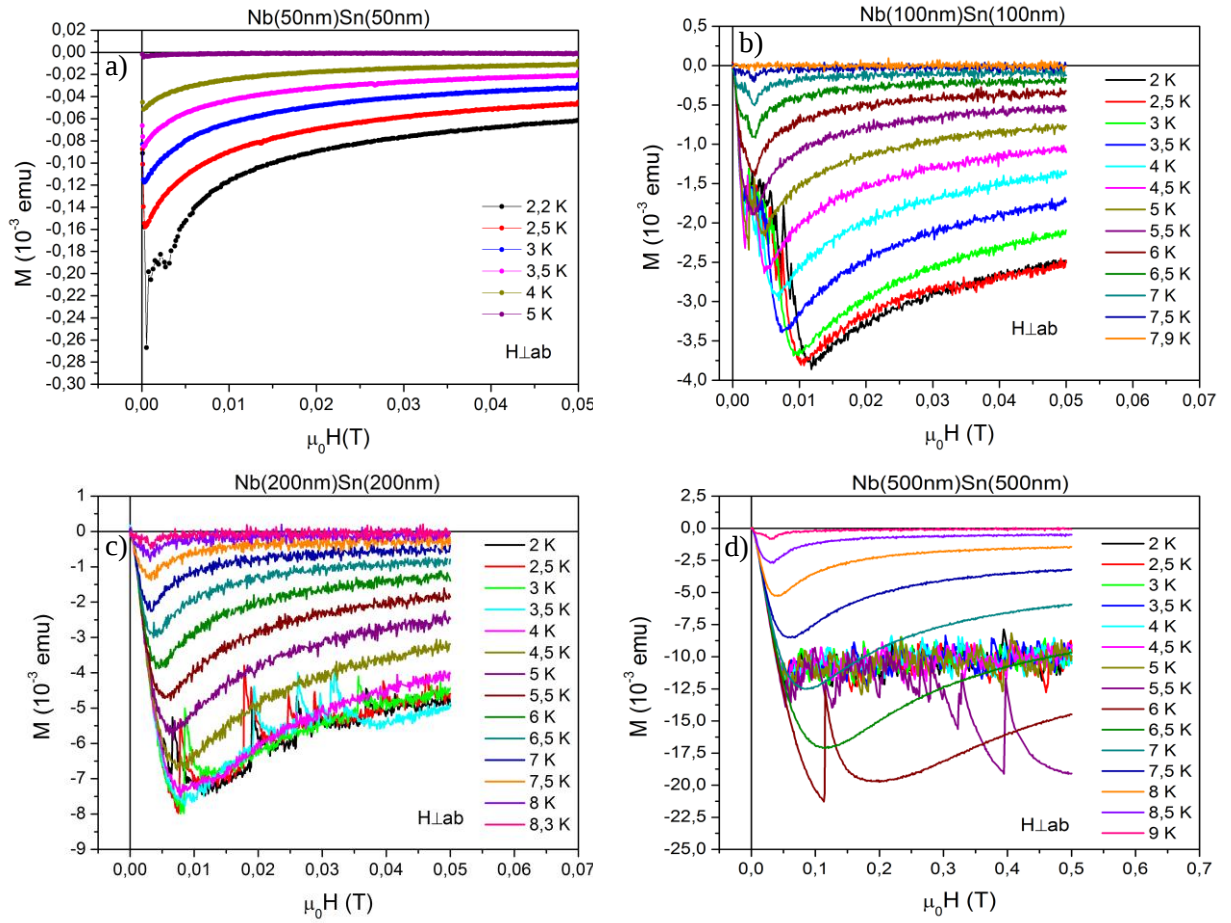


Figura 56: Primeiro ramo da curva de histerese, em diversas temperaturas, para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm). O campo magnético foi aplicado perpendicular ao plano.

6.3 Campos críticos

Os diagramas de fase dos campos críticos superiores foram obtidos pelas curvas de magnetoresistividade, tomando o critério de 50% do valor de resistividade normalizada em relação a estado normal, ρ_{nHN} . A Figura 57 apresenta o critério para o cálculo de $\mu_0 H_{c2}$, neste caso, para o filme de Sn(100nm). Esse procedimento foi adotado para todas as amostras estudadas.

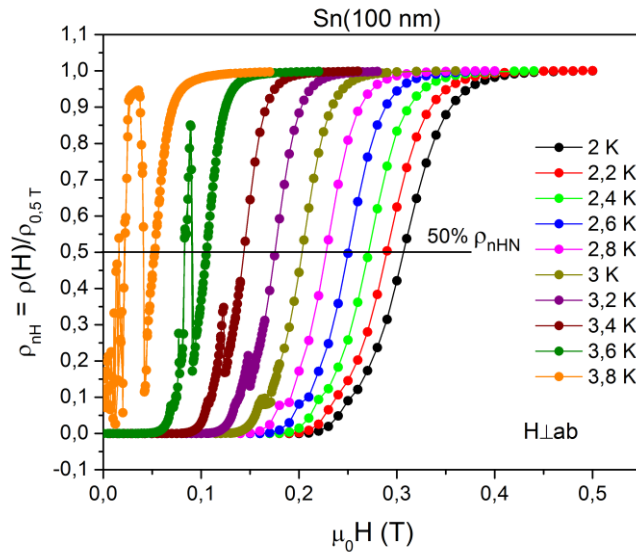


Figura 57: Critério de obtenção de $\mu_0 H_{C2}$ a partir de 50% do valor da ρ_{nHN} para o filme de Sn(100nm).

6.3.1 Sn

Os gráficos dos campos críticos superiores, dos filmes de Sn, são mostrados na Figura 58 para campos aplicados na orientação perpendicular e paralela. As linhas tracejadas representam os ajustes das curvas para a obtenção do campo crítico em $T = 0$. Observa-se a dependência dos valores de $\mu_0 H_{C2}$ em função da orientação do campo aplicado. Como esperado, as medidas com campo paralelo apresentam valores maiores que as medidas com campo perpendicular.

As curvas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ do filme de Sn(100nm) mostrou dependência com $(1 - t)^{1/2}$ em concordância com a expressão $\mu_0 H_{C2}(T) = \mu_0 H_{C2}(0) (1 - t)^{1/2}$ para a orientação perpendicular, onde $t = T/T_C$, e o filme de Sn(200nm) apresentou a mesma dependência em ambas as orientações. A não linearidade da função em campo perpendicular indica que o comportamento dos filmes é 2D. Já o diagrama do filme de Sn(500nm) foi ajustado em campo perpendicular pela expressão $\mu_0 H_{C2}(T) = \mu_0 H_{C2}(0)(1 - t)$, que possui dependência linear, e em campo paralelo pela expressão empírica $\mu_0 H_{C2}(T) = \mu_0 H_{C2}(0) (1 - t)^\delta$ [129], com $\delta = 0,61$. A dependência linear em campo perpendicular sugere um comportamento 3D como

era esperado devido a alta espessura, e o valor de δ encontrado para campo paralelo indica uma mudança de comportamento 2D para 3D.

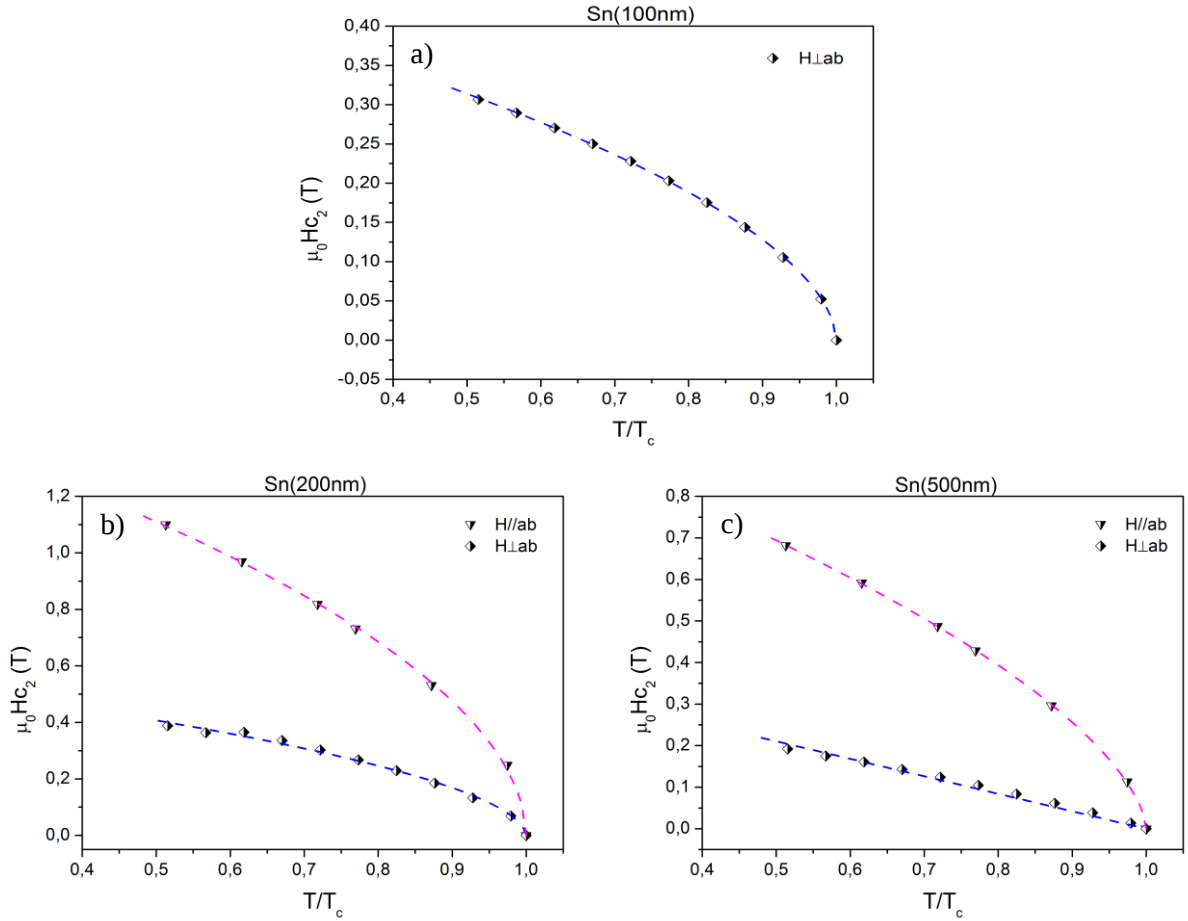


Figura 58: Diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ para os filmes de a) Sn(100nm) em campo perpendicular e b) Sn(200nm) e c) Sn(500nm) em ambas as orientações de campo aplicado.

Os valores de T_c , $\mu_0 H_{C2}(0)$ e os demais dados obtidos para os filmes de Sn estão listados na Tabela 5 para campo perpendicular e na Tabela 6 para campo paralelo. O comprimento de coerência pôde ser estimado a partir dos valores de $\mu_0 H_{C2}(0)$, pela expressão $\mu_0 H_{C2}(0) = \sqrt{12} \Phi_0 / 2\pi \xi_{\parallel} d$, no caso 2D e $\mu_0 H_{C2}(0) = \Phi_0 / 2\pi \xi_{\parallel}^2$, no caso 3D [11].

O valor do livre caminho médio l e do comprimento de penetração λ pode ser obtido através das expressões para supercondutores no limite sujo ($l \ll \xi_0$) [11], dadas por:

$$\xi(T) = 0,855 \sqrt{\xi_0 l} (1 - T/T_c)^{-1/2} \quad (34)$$

e

$$\lambda(T) = \lambda_L(0) \sqrt{\frac{\xi_0}{1,33l}} (1 - T/T_c)^{-1/2}, \quad (35)$$

onde $\xi_0 = 180 \text{ nm}$ e $\lambda_L(0) = 42 \text{ nm}$ [9]. Os valores de l e λ estão listados nas Tabelas 5 e 6 para as orientações perpendicular e paralela, respectivamente. A partir destes dados foi possível obter o parâmetro de Ginzburg-Landau para todos os filmes de Sn. Os valores de κ indicam que os filmes são supercondutores do tipo II, o que era esperado para os filmes de Sn(100nm) e Sn(200nm). Já para o filme de Sn(500nm), esperava-se que fosse supercondutor do tipo I, como previsto por Dolan e colaboradores [130]. Possivelmente o filme de Sn(500nm) comporta-se como supercondutor do tipo II devido à granularidade e a não homogeneidade do filme.

Os valores dos campos críticos superiores obtidos para os filmes de Sn excedem em uma ou duas ordens de grandeza o valor volumétrico apresentando na Tabela 4. Essa mudança pode ser explicada pelo baixo valor do livre caminho médio, que diminui o comprimento de coerência e causa o aumento de $\mu_0 H_{c2}(0)$.

Tabela 5: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{c2}(T)$ em campo perpendicular, para os filmes de Sn.

	$T_c \text{ (K)}$	$\mu_0 H_c^\perp(0) \text{ (T)}$	$\delta^\perp$	$\xi_\parallel^\perp \text{ (nm)}$	$l \text{ (nm)}$	$\lambda \text{ (nm)}$	$\kappa \text{ } (\lambda/\xi)$
Sn(100nm)	3,88	0,46	0,5	26,51	5,34	149,51	5,63
Sn(200nm)	3,88	0,56	0,5	10,55	0,846	375,62	35,60
Sn(500nm)	3,88	0,42	1	27,99	5,95	141,64	5,06

Tabela 6: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{c2}(T)$ em campo paralelo, para os filmes de Sn.

	$T_c \text{ (K)}$	$\mu_0 H_c^\parallel(0) \text{ (T)}$	$\delta^\parallel$	$\xi_\parallel^\parallel \text{ (nm)}$	$l \text{ (nm)}$	$\lambda \text{ (nm)}$	$\kappa \text{ } (\lambda/\xi)$
Sn(200nm)	3,88	1,55	0,5	3,67	0,102	1081,79	294,55
Sn(500nm)	3,88	1,06	0,61	17,62	2,35	225,37	12,79

6.3.2 Nb

Os diagramas de $\mu_0 H_{c2}(T)$ para os filmes de Nb são mostrados na Figura 59. Apenas para o filme com espessura de 50 nm as medidas em campo paralelo apresentam valores maiores que as medidas em campo perpendicular. O esperado é que os valores em campo

paralelo sejam maiores que os valores em campo perpendicular, pois o comprimento de coerência é menor em campo paralelo [11], pois é limitado pela espessura. O comportamento apresentado pelas amostras de Nb com espessura maior que 50 nm pode estar relacionado ao comportamento volumétrico, 3D. Nenhum dos filmes de Nb apresentou dependência com $(1 - t)^{1/2}$ em campo paralelo, os ajustes foram realizados pela expressão empírica $\mu_0 H_{C2}(T) = \mu_0 H_{C2}(0) (1 - t)^\delta$ [129], com $0,59 < \delta < 1,14$ (ver Tabela 8). Os filmes de Nb(50nm) e Nb(100nm) apresentam mudança de comportamento de 2D para 3D e os demais apresentam comportamento 3D. Para campo perpendicular o filme de Nb(50nm) foi ajustado com a expressão empírica com $\delta = 0,90$ e os demais filmes foram ajustados com a expressão linear, indicando que todos os filmes de Nb apresentam comportamento 3D em campo perpendicular.

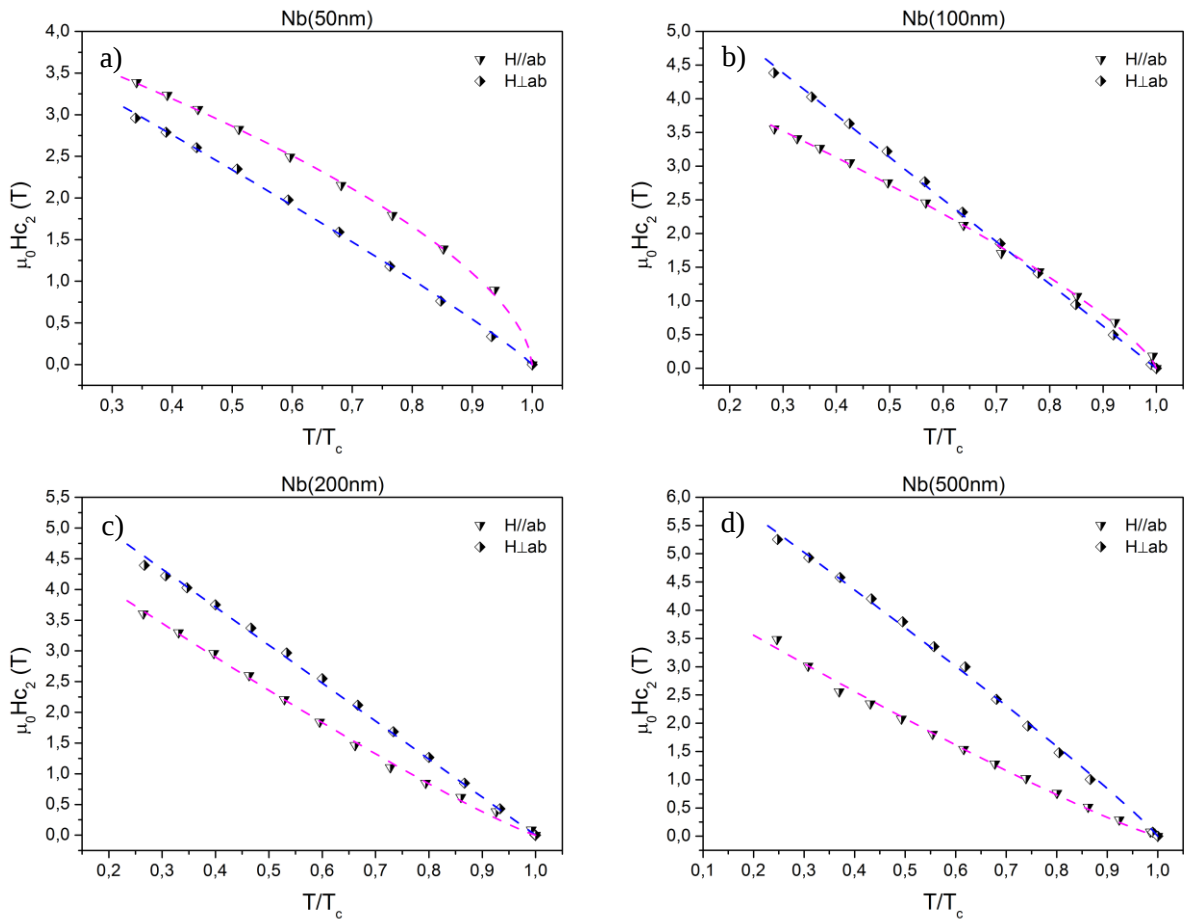


Figura 59: Diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ para os filmes de a) Nb(50nm), b) Nb(100nm), c) Nb(200nm) e d) Nb(500nm) em ambas as orientações de campo aplicado.

Os valores de T_c , $\mu_0 H_{c2}(0)$ e os demais dados obtidos para os filmes de Nb estão listados na Tabela 7 para campo perpendicular e na Tabela 8 para campo paralelo. O comprimento de coerência pôde ser estimado a partir dos valores de $\mu_0 H_{c2}(0)$, pela expressão $\mu_0 H_{c2}(0) = \Phi_0 / 2\pi \xi_{\parallel}^2$, o livre caminho médio e o comprimento de penetração foram obtidos a partir das Equações 34 e 35.

Tabela 7: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{c2}(T)$ em campo perpendicular, para os filmes de Nb.

	T_c (K)	$\mu_0 H_{c2}^{\perp}(0)$ (T)	$\delta^{\perp}$	$\xi_{\parallel}^{\perp}(nm)$	l (nm)	λ (nm)	κ (λ/ξ)
Nb(50nm)	5,90	4,38	0,90	8,66	1,97	122,85	14,18
Nb(100nm)	7,07	6,26	1	7,25	1,38	146,78	20,24
Nb(200nm)	7,55	6,18	1	7,29	1,40	145,73	19,99
Nb(500nm)	8,08	6,96	1	6,87	1,24	154,85	22,21

Tabela 8: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{c2}(T)$ em campo paralelo, para os filmes de Nb.

	T_c (K)	$\mu_0 H_{c2}^{\parallel}(0)$ (T)	$\delta^{\parallel}$	$\xi_{\parallel}^{\parallel}(nm)$	l (nm)	λ (nm)	κ (λ/ξ)
Nb(50nm)	5,90	4,32	0,59	8,72	2,00	121,92	13,98
Nb(100nm)	7,07	4,62	0,76	8,44	1,87	126,09	14,93
Nb(200nm)	7,55	5,16	1,13	7,98	1,67	133,43	16,72
Nb(500nm)	8,08	4,58	1,14	8,47	1,89	125,42	14,80

Os valores dos campos críticos superiores obtidos para os filmes de Nb excedem o valor apresentando na Tabela 4. Valores semelhantes de $\mu_0 H_{c2}(0)$ foram reportados por Peroz e Villard [131] para filmes de Nb com 100 nm de espessura depositado em substratos Si e Al_2O_3 . Sidorenko e colaboradores [132] apresentaram valores semelhantes do comprimento de coerência para filmes de Nb de 40 nm depositados em substrato de silício.

Os valores do comprimento de coerência também podem ser calculados utilizando a equação proposta por Orlando e colaboradores [133]:

$$\xi_{GL} = \sqrt{\frac{\Phi_0}{-2\pi T_c \left(\frac{dH_{c2}}{dT} \right)_{T=T_c}}}, \quad (36)$$

onde $\left(\frac{dH_{C2}}{dT}\right)_{T=T_C}$ é a derivada de $\mu_0 H_{C2}(T)$ em função da temperatura em $T = T_C$. Os valores encontrados foram coerentes com os valores descritos nas Tabelas 7 e 8 e estão relacionados nas Tabelas 9 e 10.

O parâmetro de Ginzburg-Landau também pode ser estimado, no limite sujo, pela combinação de duas equações obtida por Collings [134]:

$$k_{GL} = 7,49 \times 10^3 \rho_n \gamma_\vartheta^{1/2} \quad (37)$$

e

$$-\left(\frac{dH_{C2}}{dT}\right)_{T=T_C} = 4,49 \times 10^4 \rho_n \gamma_\vartheta, \quad (38)$$

onde ρ_n é a resistividade normal e γ_ϑ é o coeficiente de calor específico eletrônico. Assim temos:

$$\kappa_{GL} = 35,4 \sqrt{-\rho_n \left(\frac{dH_{C2}}{dT}\right)_{T=T_C}}. \quad (39)$$

Os valores de κ listados nas Tabelas 7 e 8 são equivalentes a aproximadamente 2 vezes os valores relacionados nas Tabelas 9 e 10, ainda assim, nos dois casos, mostram que os filmes de Nb são supercondutores do tipo II.

Tabela 9: Comprimentos de coerência e parametros de Ginzburg-Landau dos filmes de Nb obtidos pelas Equações 36 e 39, respectivamente, para campo perpendicular.

	T_C (K)	$\rho_n^\perp$ ($\mu\Omega m$)	$\left(\frac{dH_{C2}}{dT}\right)_{T=T_C}^\perp \left(\frac{10^{-4} T}{K}\right)$	$\xi_{GL}(nm)$	κ_{GL}
Nb(50nm)	5,90	0,0678	-8500	8,10	8,49
Nb(100nm)	7,07	0,045	-8760	7,28	7,02
Nb(200nm)	7,55	0,043	-8380	7,21	6,71
Nb(500nm)	8,08	0,025	-9300	6,61	5,39

Tabela 10: Comprimentos de coerência e parâmetros de Ginzburg-Landau dos filmes de Nb obtidos pelas Equações 36 e 39, respectivamente, para campo paralelo.

	T_c (K)	$\rho_n^{\parallel}$ ($\mu\Omega m$)	$\left(\frac{dH_{c2}}{dT}\right)_{T=T_c}^{\parallel} \left(\frac{10^{-4} T}{K}\right)$	$\xi_{GL}(nm)$	κ_{GL}
Nb(50nm)	5,90	0,051	-9920	7,49	7,96
Nb(100nm)	7,07	0,059	-9980	6,82	8,59
Nb(200nm)	7,55	0,049	-5920	8,58	6,02
Nb(500nm)	8,08	0,084	-9300	6,61	9,89

6.3.3 Nb/Sn

Os diagramas de $\mu_0 H_{c2}(T)$ para as bicamadas de Nb/Sn são mostrados na Figura 60. Nas bicamadas de Nb(100nm)/Sn(100nm) e Nb(500nm)/Sn(500nm) as medidas em campo perpendicular apresentam valores maiores que as medidas em campo paralelo e para a bicamada Nb(200nm)/Sn(200nm) os valores são aproximados; esses comportamentos possivelmente estão relacionados ao comportamento volumétrico, 3D, dos filmes de Nb. Em todas as bicamadas os ajustes foram realizados, em campo paralelo, pela expressão empírica $\mu_0 H_{c2}(T) = \mu_0 H_{c2}(0) (1 - t)^{\delta}$, com $0,61 < \delta < 1,24$, ver Tabela 11. Os valores de δ indicam que as bicamadas apresentam mudança de comportamento de 2D para 3D para a bicamada Nb(50nm)/Sn(50nm) e 3D para as demais bicamadas. Em campo perpendicular as bicamadas de Nb(50nm)/Sn(50nm) e Nb(500nm)/Sn(500nm) foram ajustadas com a expressão empírica e as demais foram ajustadas com a expressão linear, os ajustes indicam que o comportamento das bicamadas é 3D.

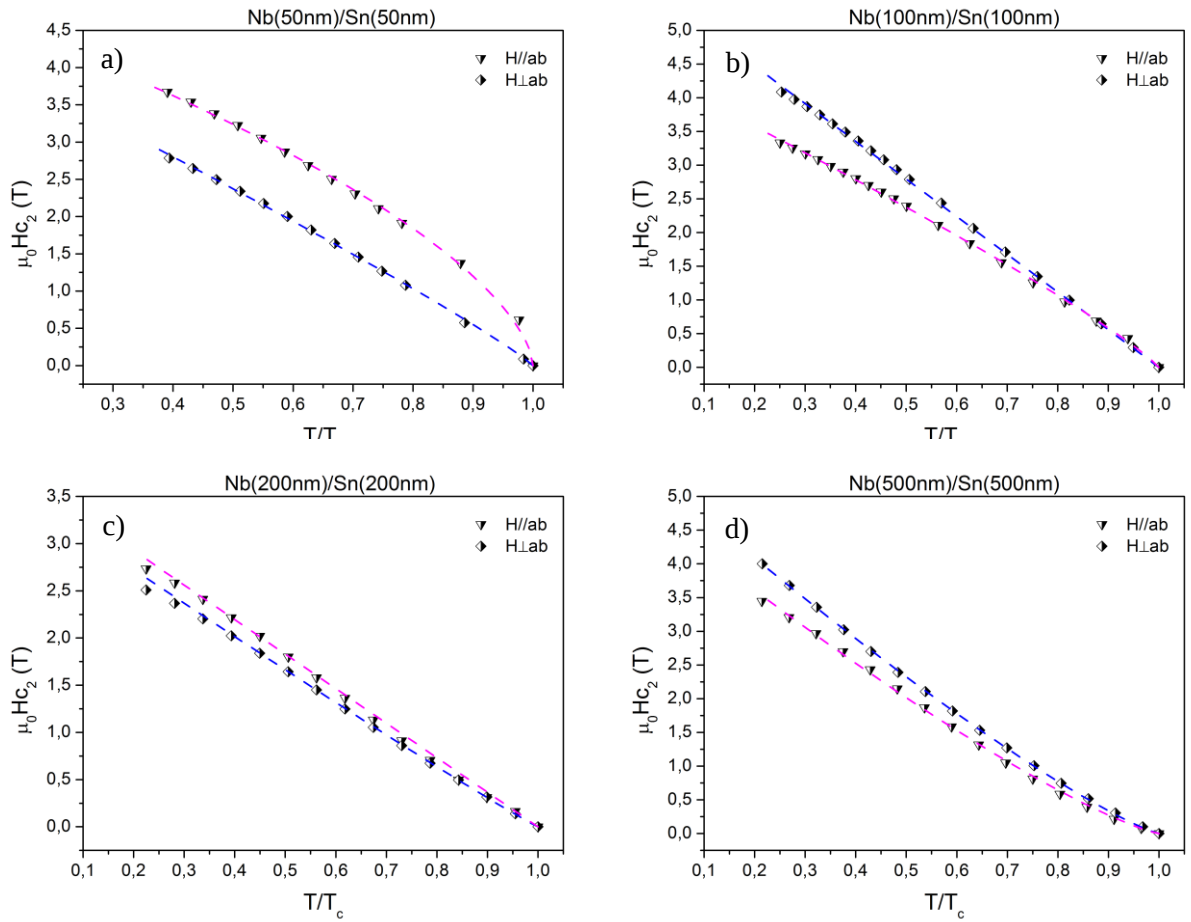


Figura 60: Diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) em ambas as orientações de campo aplicado.

Os valores de T_c , $\mu_0 H_{C2}(0)$, δ e $\xi_{\parallel}$ estão listados na Tabela 11 para campo perpendicular e paralelo. O comprimento de coerência pôde ser estimado a partir dos valores de $\mu_0 H_{C2}(0)$, pela expressão $\mu_0 H_{C2}(0) = \Phi_0 / 2\pi \xi_{\parallel}^2$.

Tabela 11: Parâmetros supercondutores obtidos a partir dos ajustes dos diagramas de $\mu_0 H_{C2}(T)$ em ambas as orientações de campo aplicado, para as bicamadas de Nb/Sn.

	T_c (K)	$\mu_0 H_{C2}^{\perp}(0)$ (T)	$\delta^{\perp}$	$\xi_{\parallel}^{\perp}$ (nm)	$\mu_0 H_{C2}^{\parallel}(0)$ (T)	$\delta^{\parallel}$	$\xi_{\parallel}^{\parallel}$ (nm)
Nb(50nm)/Sn(50nm)	5,07	4,45	0,90	8,59	4,96	0,61	8,14
Nb(100nm)/Sn(100nm)	7,92	5,59	1	7,67	4,34	0,87	8,70
Nb(200nm)/Sn(200nm)	8,90	3,28	1	10,01	3,65	1,03	9,49
Nb(500nm)/Sn(500nm)	9,33	5,34	1,20	7,85	4,75	1,24	8,32

Para a bicamada de Nb(500nm)/Sn(500nm) os diagrama de $\mu_0 H c_2(T)$ apresentam curvatura positiva em todo o intervalo para campo perpendicular e paralelo. Broussard e Geballe [86] sugerem que a curvatura positiva de $\mu_0 H c_2(T)$ em campo perpendicular está relacionada ao fato do Nb estar atingindo o limite limpo. Associação da curvatura positiva com a qualidade da amostra também foi apresentada por Freudenberger e colaboradores [129] para amostras de $Y_xLu_{1-x}Ni_2B_2C$.

Os valores de $\mu_0 H c_2(T)$ das bicamadas de Nb/Sn são menores que aos valores encontrados para os filmes de Nb e maiores que dos filmes de Sn, deste trabalho. O comprimento de coerência também foi calculado utilizando a Equação 36 e o parâmetro de Ginzburg-Landau utilizando a Equação 39; os valores estão listados nas Tabelas 12 e 13 para campos perpendicular e paralelo, respectivamente. Os valores de κ indicam que todas as bicamadas se comportam como supercondutores do tipo II.

Tabela 12: Comprimentos de coerência e parametros de Ginzburg-Landau das bicamadas de Nb/Sn obtidos pelas Equações 36 e 39, respectivaente, para campo perpendicular.

	T_C (K)	$\rho_n^\perp$ ($\mu\Omega m$)	$\left(\frac{dH_{C2}}{dT}\right)_{T=T_C}^\perp \left(\frac{10^{-4} T}{K}\right)$	$\xi_{GL}(nm)$	κ_{GL}
Nb(50nm)/Sn(50nm)	5,07	0,070	-9720	8,17	9,23
Nb(100nm)/Sn(100nm)	7,92	0,035	-7020	7,69	5,54
Nb(200nm)/Sn(200nm)	8,90	0,0101	-3580	10,16	2,12
Nb(500nm)/Sn(500nm)	9,33	0,00877	-4080	9,29	2,11

Tabela 13: Comprimentos de coerência e parametros de Ginzburg-Landau das bicamadas de Nb/Sn obtidos pelas Equações 36 e 39, respectivaente, para campo paralelo.

	T_C (K)	$\rho_n^\parallel$ ($\mu\Omega m$)	$\left(\frac{dH_{C2}}{dT}\right)_{T=T_C}^\parallel \left(\frac{10^{-4} T}{K}\right)$	$\xi_{GL}(nm)$	κ_{GL}
Nb(50nm)/Sn(50nm)	5,07	0,0841	-15220	6,53	12,66
Nb(100nm)/Sn(100nm)	7,92	0,0353	-5200	8,93	4,79
Nb(200nm)/Sn(200nm)	8,90	0,0142	-3000	11,10	2,31
Nb(500nm)/Sn(500nm)	9,33	0,00983	-2680	11,47	1,81

O aumento na T_C , se comparado com os filmes de referência, também pode ser oriundo do efeito de proximidade entre as camadas S-N, para $T > 3,88 K$. O aumento da temperatura crítica foi observado em filmes de Nb ligados quimicamente à nanopartículas de

prata [135], onde os autores consideram que o efeito de acoplamento de elétrons entre o Nb e as nanopartículas é mediado pelos ligantes orgânicos. Montiel e Buzdin [136], através de estudo teórico, sugerem que a T_C aumenta na presença de impurezas. No nosso caso, a granularidade dos filmes de Sn pode induzir o aumento da T_C nos filmes de Nb. Este efeito deverá ser melhor investigado a partir da preparação de bicamadas onde a camada de Sn seja mais homogênea.

Os diagramas dos campos críticos inferiores para as bicamadas de Nb/Sn são apresentados na Figura 61. Os dados foram obtidos a partir das curvas $M \times H$, onde os valores de $\mu_0 H_{C1}(T)$ foram determinados pelo ponto em que a curva se afasta da linha Meissner para valores superiores a $\Delta M = 10^{-3} \text{ emu}$, como mostrado no detalhe da Figura 61(a). O comportamento das curvas de $\mu_0 H_{C1}(T)$ não é convencional; a bicamada de Nb(50nm)/Sn(50nm) apresenta uma mudança na tendência da curva em $T/T_C = 0,58$ o que corresponde a $T = 3 \text{ K}$. A partir deste valor, os valores de $\mu_0 H_{C1}(T)$ sofrem um aumento acentuado, ver Figura 61(a). A bicamada de Nb(100nm)/Sn(100nm) apresenta uma mudança em $T = 5 \text{ K}$, onde, para temperaturas menores, os valores de $\mu_0 H_{C1}(T)$ diminuem, o mesmo ocorre em $T = 3,5 \text{ K}$ para a bicamada Nb(200nm)/Sn(200nm) e em $T = 6 \text{ K}$ para a bicamada Nb(500nm)/Sn(500nm), Figuras 61(b), 61(c) e 61(d), respectivamente.

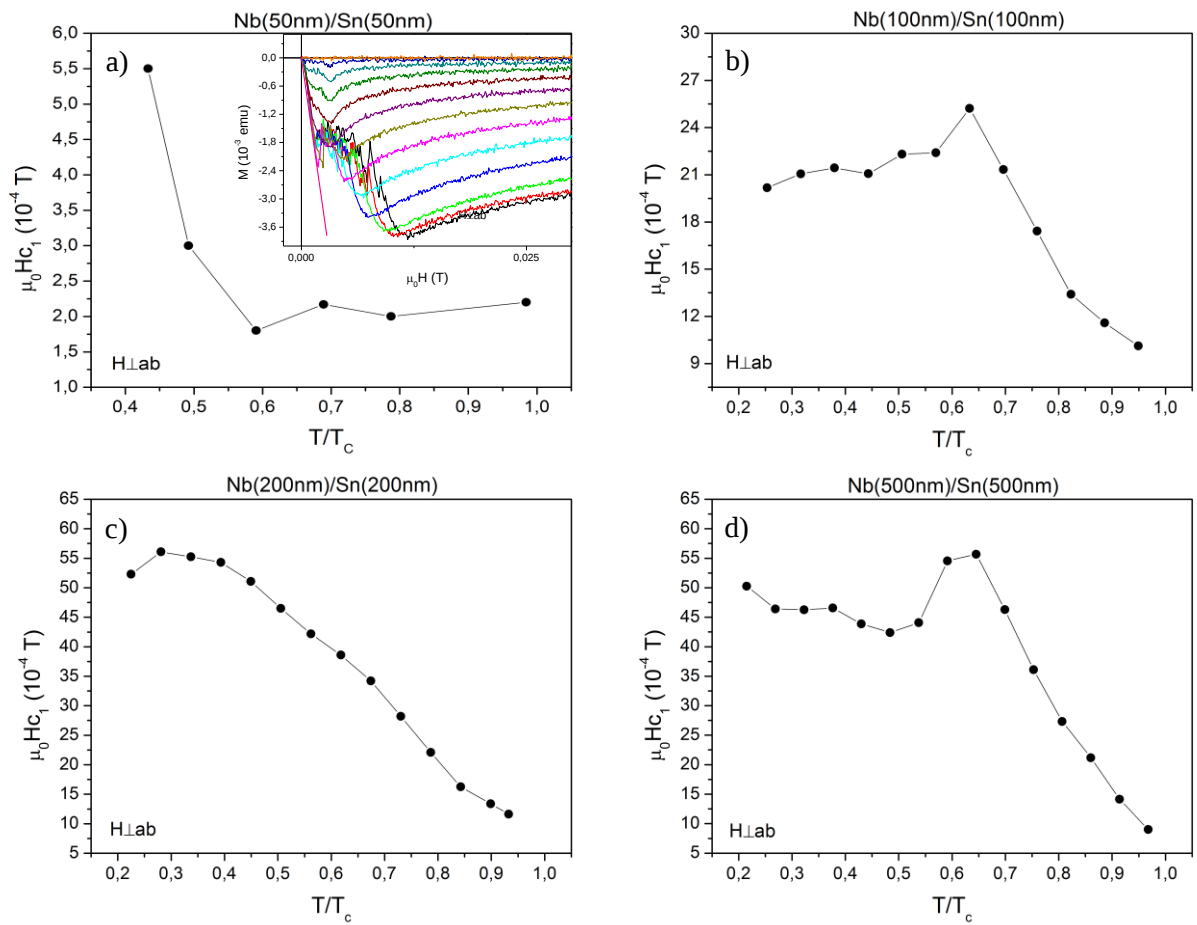


Figura 61: Diagramas dos campos críticos inferiores para as bicamadas de a) Nb(50nm)/Sn(50nm), b) Nb(100nm)/Sn(100nm), c) Nb(200nm)/Sn(200nm) e d) Nb(500nm)/Sn(500nm) com campo aplicado perpendicular.

Para as bicamadas de Nb(100nm)/Sn(100nm), Nb(200nm)/Sn(200nm) e Nb(500nm)/Sn(500nm) a mudança na tendência das curvas de $\mu_0 H_{C1}(T)$ possivelmente é provocada pela presença de *flux jumps* nas medidas, como pode ser visto nas Figuras 56(b), 56(c) e 56(d), respectivamente. Em função do comportamento das curvas não foi possível obter os valores de $\mu_0 H_{C1}(0)$.

7. CONCLUSÃO

Neste trabalho foram estudados dois conjuntos de amostras, o primeiro consiste da tricamada de Pb/Ge/Nb na presença de centros de ancoragem magnéticos e o segundo consiste da bicamada de Nb/Sn, ambos com seus respectivos filmes de referência. A bicamada de Nb/Sn foi estudada em função da espessura das camadas, sendo as espessuras 50 nm, 100 nm 200 nm e 500 nm.

O principal objetivo deste trabalho foi estudar o efeito de proximidade entre materiais supercondutores e, ao mesmo tempo, o comportamento desses sistemas diante de centros de ancoragem, bem como as mudanças provocadas pelas diferentes espessuras das camadas. Dentre os resultados esperados estavam as mudanças na temperatura crítica e nos campos críticos.

A partir dos resultados obtidos verificamos que as membranas e os nanofios foram preparados de maneira satisfatória por meio de técnicas eletroquímicas, uma vez que, as imagens de MEV apresentam membranas com regiões de auto-ordenamento da ordem de 1 μm e, conseqüentemente, os nanofios estão organizados de forma hexagonal. As curvas de histerese dos nanofios mostram que eles apresentam direção de fácil magnetização ao longo de seus respectivos eixos. O filme de Pb apresenta temperatura de transição próxima a T_C do material volumétrico e o filme de Nb apresenta uma T_C inferior ao do material volumétrico e bem próxima da T_C do filme de Pb deste trabalho. As tricamadas de Pb/Ge/Nb apresentam apenas uma T_C , que corresponde ao valor encontrado para o Pb.

No estudo das bicamadas de Nb/Sn foi observado que a T_C das bicamadas é maior que dos respectivos filmes de referência, este comportamento pode ser oriundo do efeito de proximidade S-N. Também foi observado que a T_C aumenta com o aumento da espessura das camadas, comportamento semelhante foi observado para os filmes de Nb. As bicamadas apresentaram valores de $\mu_0 H_{C2}$ um pouco menor que os valores encontrados para o Nb, ainda assim, tanto as bicamadas quanto os filmes de Nb e Sn apresentaram altos valores de $\mu_0 H_{C2}$ e baixos valores de ξ devido ao valor reduzido de l . Os parâmetros de Ginzburg-Landau encontrados indicam que tanto os filmes de Nb e Sn quanto as bicamadas são supercondutores do tipo II. As medidas de magnetização realizadas nas bicamadas apresentam *flux jumps*, indicando a ocorrência de instabilidade termomagnética. Também, a partir destas medidas, foi

possível extrair valores de $\mu_0 H c_1$ em campo perpendicular. Os diagramas de $\mu_0 H c_1$ apresentaram comportamento anômalo devido à da presença de *flux jumps*.

8. PERSPECTIVAS

Fica como perspectivas deste trabalho o término da caracterização da tricamada de Pb/Ge/Nb, tanto a caracterização das propriedades supercondutoras quanto a caracterização da ancoragem de vórtices nesses sistemas. Essas caracterizações poderiam ser realizadas por meio de medidas de resistividade em função do campo e da temperatura e a visualização de vórtices por micro-sensoriamento hall (SHPM) e microscopia de força magnética (MFM).

Também fica como perspectivas uma completa investigação de $\mu_0 H c_1(T)$ com medidas realizadas em campo paralelo e, conseqüentemente, a construção de diagramas de fases que evidencie os estados Meissner, misto e normal para as bicamadas Nb/Sn e suas respectivas amostras de referência. Além disso, um estudo mais detalhado das propriedades supercondutoras em função da granularidade das amostras e, a preparação e a caracterização de amostras mais homogêneas.

REFERÊNCIAS

- [1] O. V. Dobrovolskiy, M. Huth, Crossover from dirty to clean superconducting limit in dc magnetron-sputtered thin Nb films, *Thin Solid Films*. 520 (2012) 5985.
- [2] S. Takahashi, M. Tachiki, Theory of the upper critical field of superconducting superlattices, *Phys. Rev. B*. 33 (1986) 4620.
- [3] W.D.J. Callister, *Fundamentos da Ciência e Engenharia de Materiais: uma abordagem integrada*, 2^a ed., LTC, Rio de Janeiro, 2006.
- [4] A.M. Forrest, Meissner and Ochsenfeld revisited, *Eur. J. Phys.* 4 (1983) 117.
- [5] J.B. Ketterson, S.N. Song, *Superconductivity*, Cambridge University Press, New York, 1998.
- [6] K. Fossheim, A. Sudbo, *Superconductivity: physics and applications*, Wiley, England, 2004.
- [7] F. Ostermann, P. Pureur, *Supercondutividade*, 1^a ed., Editora Livraria da Física: Sociedade Brasileira de Física, São Paulo, 2005.
- [8] F. London, H. London, The electromagnetic equations of the supraconductor, *Proc. R. Soc. A*. 149 (1935) 71.
- [9] C.P. Poole Jr., H.A. Farach, R.J. Creswick, R. Prozorov, *Superconductivity*, 2^a ed., Academic Press, San Diego, 2007.
- [10] C. Kittel, *Introdução à Física do Estado Sólido*, 8^a ed., LTC, Rio de Janeiro, 2006.
- [11] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity*, 2^a ed., McGraw-Hill, 1996.
- [12] A.A. Abrikosov, On The Magnetic Properties of Superconductors of the Second Group, *Sov. Phys. JETP*. 5 (1957) 1175.
- [13] U. Essmann, H. Trauble, The direct observation of individual flux lines in type II superconductors, *Phys. Lett.* 24 (1967) 526.
- [14] T. Matsushita, *Flux pinning in superconductors*, Springer Berlin Heidelberg, New York, 2007.
- [15] W.-J. Zhang, S.-K. He, B.-H. Li, F. Cheng, B. Xu, Z.-C. Wen, et al., Abnormal magnetoresistance behavior in Nb thin films with rectangular arrays of antidots, *Chinese Phys. B*. 21 (2012) 077401.
- [16] M. Latimer, G. Berdiyrov, Z. Xiao, W. Kwok, F. Peeters, Vortex interaction enhanced saturation number and caging effect in a superconducting film with a honeycomb array of nanoscale holes, *Phys. Rev. B*. 85 (2012) 012505.

- [17] S. Raedts, A.V. Silhanek, M.J. Van Bael, R. Jonckheere, V. V. Moshchalkov, Flux pinning properties of holes and blind holes arranged periodically in a superconductor, *Phys. C Supercond.* 404 (2004) 298–301. doi:10.1016/j.physc.2003.09.095.
- [18] G. Shaw, B. Bag, S.S. Banerjee, H. Suderow, T. Tamegai, Generating strong magnetic flux shielding regions in a single crystal of Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ using a blind hole array, *Supercond. Sci. Technol.* 25 (2012) 095016.
- [19] M. Vélez, J.I. Martín, J.E. Villegas, A. Hoffmann, E.M. González, J.L. Vicent, et al., Superconducting vortex pinning with artificial magnetic nanostructures, *J. Magn. Magn. Mater.* 320 (2008) 2547.
- [20] K. Kim, A.E. Ozmetin, D.G. Naugle, I.F. Lyuksyutov, Flux pinning with a magnetic nanorod array, *Appl. Phys. Lett.* 97 (2010) 042501.
- [21] Z. Ye, I.F. Lyuksyutov, W. Wu, D.G. Naugle, Superconducting properties of Pb₈₂Bi₁₈ films controlled by ferromagnetic nanowire arrays, *Supercond. Sci. Technol.* 24 (2011) 024019.
- [22] F.T. Dias, V.N. Vieira, M.L. De Almeida, a. L. Falck, P. Pureur, J.L. Pimentel, et al., Paramagnetic Meissner effect at high fields in YCaBaCuO single crystal and melt-textured YBaCuO, *Phys. C Supercond. Its Appl.* 470 (2010) S111.
- [23] P. Svedlindh, K. Niskanen, P. Norling, P. Nordblad, L. Lundgren, B. Lönnberg, et al., Anti-Meissner effect in the BiSrCaCuO-system, *Phys. C Supercond.* 162-164 (1989) 1365.
- [24] W. Braunisch, N. Knauf, G. Bauer, A. Kock, A. Becker, B. Freitag, et al., Paramagnetic Meissner effect in high-temperature superconductors, *Phys. Rev. B.* 48 (1993) 4030.
- [25] P. Kostic, B. Veal, a. P. Paulikas, U. Welp, V.R. Todt, C. Gu, et al., Paramagnetic Meissner effect in Nb, *Phys. Rev. B.* 53 (1996) 791.
- [26] A. Geim, S. Dubonos, J. Lok, M. Henini, J. Maan, Paramagnetic Meissner effect in small superconductors, *Nature.* 396 (1998) 144.
- [27] F. V. Kusmartsev, Destruction of the Meissner effect in granular high-temperature superconductors, *Phys. Rev. Lett.* 69 (1992) 2268.
- [28] A.E. Koshelev, A.I. Larkin, Paramagnetic moment in field-cooled superconducting plates: Paramagnetic Meissner effect, *Phys. Rev. B.* 52 (1995) 559.
- [29] V. V Moshchalkov, X.G. Qiu, V. Bruyndoncx, Paramagnetic Meissner effect from the self-consistent solution of the Ginzburg-Landau equations, *Phys. Rev. B.* 55 (1997) 793.
- [30] V. V. Moshchalkov, J. Fritzsche, *Nanostructured Superconductors*, World Scientific, London, 2011.

- [31] F. Dias, P. Pureur, P. Rodrigues, X. Obradors, Paramagnetic effect at low and high magnetic fields in melt-textured $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, *Phys. Rev. B.* 70 (2004) 224519.
- [32] Y.T. Xing, H. Micklitz, E. Baggio-Saitovitch, T.G. Rappoport, Controlled switching between paramagnetic and diamagnetic Meissner effects in superconductor-ferromagnet Pb-Co nanocomposites, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* 80 (2009) 224505.
- [33] Y. Guo, Y.-F. Zhang, X.-Y. Bao, T.-Z. Han, Z. Tang, L.-X. Zhang, et al., Superconductivity modulated by quantum size effects., *Science.* 306 (2004) 1915.
- [34] C. Sürgers, C. Strunk, H. v. Löhneysen, Effect of substrate temperature on the microstructure of thin niobium films, *Thin Solid Films.* 239 (1994) 51.
- [35] D. Hazra, M. Mondal, A.K. Gupta, Correlation between structural and superconducting properties of nano-granular disordered Nb thin films, *Phys. C Supercond. Its Appl.* 469 (2009) 268.
- [36] S. Bose, C. Galande, S.P. Chockalingam, R. Banerjee, P. Raychaudhuri, P. Ayyub, Competing effects of surface phonon softening and quantum size effects on the superconducting properties of nanostructured Pb, *J. Phys. Condens. Matter.* 21 (2009) 205702.
- [37] T.-C. Chiang, Superconductivity in thin films, *Science* (80-.). 306 (2004) 1900.
- [38] B.G. Orr, H.M. Jaeger, A.M. Goldman, Transition-temperature oscillations in thin superconducting films, *Phys. Rev. Lett.* 53 (1984) 2046.
- [39] K. Il'in, D. Rall, M. Siegel, A. Engel, A. Schilling, A. Semenov, et al., Influence of thickness, width and temperature on critical current density of Nb thin film structures, *Phys. C Supercond. Its Appl.* 470 (2010) 953.
- [40] A.I. Gubin, K.S. Il'in, S.A. Vitusevich, M. Siegel, N. Klein, Dependence of magnetic penetration depth on the thickness of superconducting Nb thin films, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* 72 (2005) 064503.
- [41] F.E. Harper, M. Tinkham, The mixed state in superconducting thin films, *Phys. Rev.* 172 (1968) 441.
- [42] N. Kopnin, *Vortices in Type II Superconductors. Anisotropic and Layered Superconductors*, 1996.
- [43] M.G. Karkut, V. Matijasevic, L. Antognazza, J.M. Triscone, N. Missert, M.R. Beasley, et al., Anomalous upper critical fields of superconducting multilayers: Verification of the Takahashi-Tachiki effect, *Phys. Rev. Lett.* 60 (1988) 1751.
- [44] Y. Kozuka, M. Kim, C. Bell, B.G. Kim, Y. Hikita, H.Y. Hwang, Two-dimensional normal-state quantum oscillations in a superconducting heterostructure, *Nature.* 462 (2009) 487.

- [45] K. Ueno, T. Nojima, S. Yonezawa, M. Kawasaki, Y. Iwasa, Y. Maeno, Effective thickness of two-dimensional superconductivity in a tunable triangular quantum well of SrTiO₃, *Phys. Rev. B.* 89 (2014) 020508.
- [46] S. Bose, P. Raychaudhuri, R. Banerjee, P. Ayyub, Upper critical field in nanostructured Nb: Competing effects of the reduction in density of states and the mean free path, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* 74 (2006) 224502.
- [47] J. Pearl, Current distribution in superconducting films carrying quantized fluxoids, *Appl. Phys. Lett.* 5 (1964) 65.
- [48] I.F. Lyuksyutov, V.L. Pokrovsky, Ferromagnet–superconductor hybrids, *Adv. Phys.* 54 (2005) 67.
- [49] X. Hallet, S. Adam, L. Piraux, J. Vanacken, V. Moshchalkov, Superconducting properties of perforated NbN films using ordered arrays of ferromagnetic nanowires, *Phys. Rev. B.* 84 (2011) 144529.
- [50] M. Trezza, C. Cirillo, a I. Vorobjeva, E. a Outkina, S.L. Prischepa, C. Attanasio, Vortex matching effects in Nb thin films due to Ni nanopillars embedded in anodic aluminum oxide substrates, *Supercond. Sci. Technol.* 26 (2013) 035001.
- [51] Z. Ye, D.G. Naugle, W. Wu, I. Lyuksyutov, Superconducting Properties of Pb/Bi Films Quench-Condensed on a Porous Alumina Substrate Filled with Co Nanowires, *J. Supercond. Nov. Magn.* 23 (2010) 1083.
- [52] N. Spaldin, *Magnetic Materials. Fundamentals and Applications*, 2nd ed., Cambridge University Press, New York, 2010.
- [53] F. Colauto, *Estudo de avalanches de vórtices em filmes supercondutores de Nb e MgB₂*, Universidade Federal de São Carlos, 2008.
- [54] K.H.J. Buschow, *Consise Encyclopida of Magnetic and Superconducting Materials*, Elsevier, 2005.
- [55] F.M. Araújo-Moreira, W. Maluf, G.M. Cecato, L.F. Kawashita, P. Barbara, A.B. Cawthorne, et al., *Introdução a Supercondutores Granulares Artificiais: Rede de Junções Josephson*, *Rev. Bras. Ensino Física.* 24 (2002) 390.
- [56] B.D. Josephson, Possible new effects in superconductive tunnelling, *Phys. Lett.* 1 (1962) 251.
- [57] P.W. Anderson, J.M. Rowell, Probable observation of the Josephson superconducting tunneling effect, *Phys. Rev. Lett.* 10 (1963) 230.
- [58] S.T. Ruggiero, T.W. Barbee, M.R. Beasley, Superconducting properties of Nb/Ge metal semiconductor multilayers, *Phys. Rev. B.* 26 (1982) 4894.

- [59] D. Neerincx, K. Temst, C. Van Haesendonck, Y. Bruynseraede, Crossover in the critical field of Pb/Ge multilayers: From single-film to coupled behavior, *Phys. Rev. B.* 43 (1991) 8676.
- [60] J. Clarke, The Proximity Effect Between Superconducting and Normal Thin Films in Zero Field, *Le J. Phys. Colloq.* 29 (1968) C2–3.
- [61] A.I. Buzdin, Proximity effects in superconductor-ferromagnet heterostructures, *Rev. Mod. Phys.* 77 (2005) 935.
- [62] V.N. Kushnir, S.L. Prischepa, C. Cirillo, C. Attanasio, Proximity effect and interface transparency in Nb/Cu multilayers, *J. Appl. Phys.* 106 (2009) 113917.
- [63] M. Tachiki, S. Takahashi, Theory of Superconductivity in multilayer systems, *Phys. B Condens. Matter.* 169 (1991) 121.
- [64] R.T.W. Koperdraad, H.T. Wu, A. Lodder, Calculation of the upper critical fields in Nb/Ta multilayers, *J. Phys. Condens. Matter.* 8 (1996) 8787.
- [65] R.T.W. Koperdraad, A. Lodder, Calculation of the upper critical field of V/Ag and Nb/Cu superlattices, *Phys. Rev. B.* 51 (1995) 9026.
- [66] C. Attanasio, C. Coccorese, L. V. Mercaldo, M. Salvato, L. Maritato, A.N. Lykov, et al., Angular dependence of the upper critical field in Nb/CuMn multilayers, *Phys. Rev. B.* 57 (1998) 6056.
- [67] E.A. Ilyina, C. Cirillo, S.L. Prischepa, C. Attanasio, Two-dimensional regime in the angular dependence of the upper critical field of superconducting/normal metal hybrids, *J. Supercond. Nov. Magn.* 23 (2010) 329.
- [68] V.N. Kushnir, S.L. Prischepa, D. Mancusi, E. a. Ilyina, C. Cirillo, C. Attanasio, Interface Properties of Superconductor-Based Heterostructures from Critical Temperature Measurements, *J. Supercond. Nov. Magn.* 26 (2013) 2861.
- [69] V. Moshchalkov, R. Wordenweber, W. Lang, *Nanoscience and Engineering in Superconductivity*, Springer Berlin Heidelberg, 2010.
- [70] Z. Radovic, M. Ledvij, L. Dobrosavljevic-Grujic, A.I. Buzdin, J.R. Clem, Transition temperature of superconductor-ferromagnet superlattices, *Phys. Rev. B.* 44 (1991) 759.
- [71] J. Jiang, D. Davidović, D. Reich, C. Chien, Oscillatory Superconducting Transition Temperature in Nb/Gd Multilayers, *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995) 314.
- [72] L. V Mercaldo, C. Attanasio, C. Coccorese, L. Maritato, S.L. Prischepa, M. Salvato, Superconducting-critical-temperature oscillations in Nb/CuMn multilayers, *Phys. Rev. B.* 53 (1996) 40.
- [73] Y. Obi, M. Ikebe, T. Kubo, H. Fujimori, Oscillation phenomenon of transition temperatures in Nb/Co and V/Co superconductor/ferromagnet multilayers, *Phys. C Supercond. Its Appl.* 317-318 (1999) 149.

- [74] A.S. Sidorenko, V.I. Zdravkov, A.A. Prepelitsa, C. Helbig, Y. Luo, S. Gsell, et al., Oscillations of the critical temperature in superconducting Nb/Ni bilayers, *Ann. Phys.* 12 (2003) 37.
- [75] I.A. Garifullin, Proximity effects in ferromagnet/superconductor heterostructures, *J. Magn. Magn. Mater.* 240 (2002) 571.
- [76] T. Mühge, N. Garif'yanov, Y. Goryunov, G. Khaliullin, L. Tagirov, K. Westerholt, et al., Possible Origin for Oscillatory Superconducting Transition Temperature in Superconductor/Ferromagnet Multilayers, *Phys. Rev. Lett.* 77 (1996) 1857.
- [77] M. Vélez, M. Cyrille, S. Kim, J. Vicent, I. Schuller, Enhancement of superconductivity by decreased magnetic spin-flip scattering: Nonmonotonic TC dependence with enhanced magnetic ordering, *Phys. Rev. B.* 59 (1999) 14659.
- [78] L. Lazar, K. Westerholt, H. Zabel, L. Tagirov, Y. Goryunov, N. Garif'yanov, et al., Superconductor/ferromagnet proximity effect in Fe/Pb/Fe trilayers, *Phys. Rev. B.* 61 (2000) 3711.
- [79] T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, F. Genêt, B. Stephanidis, R. Boursier, Josephson junction through a thin ferromagnetic layer: negative coupling, *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002) 137007.
- [80] Y. Blum, A. Tsukernik, M. Karpovski, A. Palevski, Non-monotonic critical current in Nb-Cu-Ni-Cu-Nb junctions, *Phys. B.* 329-333 (2003) 1504.
- [81] K.M. Boden, W.P. Pratt, N.O. Birge, Proximity-induced density-of-states oscillations in a superconductor/strong-ferromagnet system, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* 84 (2011) 2.
- [82] J. Xia, V. Shelukhin, M. Karpovski, A. Kapitulnik, A. Palevski, Inverse proximity effect in superconductor-ferromagnet bilayer structures, *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009) 1.
- [83] G. Brammertz, A. Poelaert, A.A. Golubov, P. Verhoeve, A. Peacock, H. Rogalla, Generalized proximity effect model in superconducting bi- and trilayer films, *J. Appl. Phys.* 90 (2001) 355.
- [84] Y. Kuwasawa, T. Nojima, S. Hawang, B.J. Yaun, J.P. Whitehead, Preferential position of order parameter and angular dependence of upper critical fields in Nb/NbZr multilayers, *Phys. B.* 222 (1996) 92.
- [85] Y. Obi, M. Ikebe, H. Fujishiro, Analyses of the pinning mechanism for the superconductor/normal-metal and superconductor/superconductor multilayers, *J. Supercond. Nov. Magn.* 19 (2006) 117.
- [86] P.R. Broussard, T.H. Geballe, Critical fields of Nb-Ta multilayers, *Phys. Rev. B.* 35 (1987) 1664.

- [87] Y. Kuwasawa, T. Tosaka, A. Uchiyama, Y. Hayano, S. Nakano, Anomalous upper critical fields of superconducting Nb/Nb_{0.5}Zr_{0.5} multilayers, *Phys. B.* 165-166 (1990) 477.
- [88] Y. Obi, M. Ikebe, H. Fujishiro, Repulsive Flux Pinning Force in NbTi/Nb Superconductor/Superconductor Multilayers, *J. Low Temp. Phys.* 137 (2004) 125–137.
- [89] Y. Obi, H. Fujimori, M. Ikebe, H. Fujishiro, Flux pinning in NbTi-based multilayers, *Superlattices Microstruct.* 21 (1997) 423.
- [90] R.A. Klemm, A. Luther, M.R. Beasley, Theory of the upper critical field in layered superconductors, *Phys. Rev. B.* 12 (1975) 877.
- [91] S.T. Ruggiero, T.W. Barbee, M.R. Beasley, Superconductivity in quasi-two-dimensional layered composites, *Phys. Rev. Lett.* 45 (1980) 1299.
- [92] S. Takahashi, M. Tachiki, New phase diagram in superconducting superlattices, *Phys. Rev. B.* 34 (1986) 3162.
- [93] A.M. Md Jani, D. Losic, N.H. Voelcker, Nanoporous anodic aluminium oxide: Advances in surface engineering and emerging applications, *Prog. Mater. Sci.* 58 (2013) 636.
- [94] W. Lee, S.-J. Park, Porous anodic aluminum oxide: anodization and templated synthesis of functional nanostructures., *Chem. Rev.* 114 (2014) 7487.
- [95] Z. Su, G. Hähner, W. Zhou, Investigation of the pore formation in anodic aluminium oxide, *J. Mater. Chem.* 18 (2008) 5787.
- [96] R. Alkire, Y. Gogotsi, P. Simon, A. Eftekhari, Nanostructured materials in electrochemistry, Wiley-VCH, Weinheim, 2008.
- [97] J.P. O'Sullivan, G.C. Wood, The morphology and mechanism of formation of porous anodic films on aluminium, *Proc. R. Soc. London A.* 317 (1970) 511.
- [98] L. Zaraska, G.D. Sulka, M. Jaskuła, Anodic alumina membranes with defined pore diameters and thicknesses obtained by adjusting the anodizing duration and pore opening/widening time, *J. Solid State Electrochem.* 15 (2011) 2427.
- [99] K. Nielsch, J. Choi, K. Schwirn, R.B. Wehrspohn, U. Gösele, Self-ordering regimes of porous alumina: the 10% porosity rule, *Nano Lett.* 2 (2002) 677.
- [100] O. Jessensky, F. Muller, U. Gosele, Self-organized formation of hexagonal pore arrays in anodic alumina, *Appl. Phys. Lett.* 72 (1998) 1173.
- [101] S. Ono, M. Saito, M. Ishiguro, H. Asoh, Controlling Factor of Self-Ordering of Anodic Porous Alumina, *J. Electrochem. Soc.* 151 (2004) B473.
- [102] S. Ono, M. Saito, H. Asoh, Self-ordering of anodic porous alumina formed in organic acid electrolytes, *Electrochim. Acta.* 51 (2005) 827.

- [103] X. Kou, X. Fan, R.K. Dumas, Q. Lu, Y. Zhang, H. Zhu, et al., Memory effect in magnetic nanowire arrays, *Adv. Mater.* 23 (2011) 1393.
- [104] A.S. Samardak, E. V Sukovatitsina, A. V Ognev, L.A. Chebotkevich, R. Mahmoodi, S.M. Peighambari, et al., High-density nickel nanowire arrays for data storage applications, *J. Phys. Conf. Ser.* 345 (2012) 012011.
- [105] X. Fan, R. Cao, T. Moriyama, W. Wang, H.W. Zhang, J.Q. Xiao, Magnetic tunnel junction based microwave detector, *Appl. Phys. Lett.* 95 (2009) 122501.
- [106] G. Zheng, F. Patolsky, Y. Cui, W.U. Wang, C.M. Lieber, Multiplexed electrical detection of cancer markers with nanowire sensor arrays, *Nat. Biotechnol.* 23 (2005) 1294.
- [107] Z. Wu, Y. Zhang, K. Du, A simple and efficient combined AC-DC electrodeposition method for fabrication of highly-ordered Au nanowires in AAO template, *Appl. Surf. Sci.* 265 (2012) 149.
- [108] K. Nielsch, F. Müller, A.-P. Li, U. Gösele, Uniform nickel deposition into ordered alumina pores by pulsed electrodeposition, *Adv. Mater.* 12 (2000) 582.
- [109] M. Ohring, *Materials science of thin films: Deposition and structure*, 2^a ed., Academic Press, San Diego, 2001.
- [110] D.A. Blocker, S.I. Shah, *Handbook of thin film process technology*, Institute of Physics, Bristol, 1995.
- [111] P.J. Kelly, R.D. Arnell, *Magnetron sputtering: a review of recent developments and applications*, *Vacuum.* 56 (2000) 159.
- [112] J.F. Shackelford, *Ciência dos materiais*, 6th ed., Pearson, São Paulo, 2008.
- [113] M. Bouroushian, T. Kosanovic, *Characterization of Thin Films by Low Incidence X-Ray Diffraction*, *Cryst. Struct. Theory Appl.* 1 (2012) 35.
- [114] B.A. Dedavid, C.I. Gomes, G. Machado, *Microscopia Eletrônica de Varredura: Aplicações e preparação de amostras*, EDIPUCRS, Porto Alegre, 2007.
- [115] J.I. Goldstein, D.E. Newbury, P. Echlin, D.C. Joy, C.E. Lyman, E. Lifshin, et al., *Scanning electron microscopy and X-ray microanalysis*, 3^a ed., Kluwer Academic, New York, 2003.
- [116] A.M. Maliska, *Microscopia Eletrônica de Varredura e Microanálise*, 2004.
- [117] A.F. Padilha, *Microscopia Eletrônica de Transmissão*, (2014). http://www.angelfire.com/crazy3/qfl2308/1_multipart_xF8FF_3_MET_PMI-2201.pdf (accessed July 15, 2015).
- [118] manual PPMS, Physical Property Measurement System, CA 92121, (2008).

- [119] manual MPMS-5S, Magnetic Property Measurement System, CA 92121-1311, (1999).
- [120] P. Esquinazi, A. Setzer, D. Fuchs, Y. Kopelevich, E. Zeldov, C. Assmann, Vortex avalanches in Nb thin films: Global and local magnetization measurements, *Phys. Rev. B.* 60 (1999) 12454.
- [121] H. a. Radovan, R.J. Zieve, Vortex microavalanches in superconducting Pb thin films, *Phys. Rev. Lett.* 68 (2003) 224509.
- [122] F.S. Portela, L.T. Corredor, P. Barrozo, S.-G. Jung, G. Zhang, J. Vanacken, et al., Superconducting properties of Nb/Pb/Nb trilayer, *Supercond. Sci. Technol.* 28 (2015) 034001.
- [123] F.P. Santos, Estudo das propriedades supercondutoras em multicamadas de Nb, Pb e Sn, 2015.
- [124] F.T. Dias, V.N. Vieira, D.L. Silva, J. Albino Aguiar, D.R.B. Valadão, X. Obradors, et al., Paramagnetic moments in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ nanocomposite films, *Phys. C Supercond.* 503 (2014) 175.
- [125] B. Sacépé, C. Chapelier, T.I. Baturina, V.M. Vinokur, M.R. Baklanov, M. Sanquer, Disorder-induced inhomogeneities of the superconducting state close to the superconductor-insulator transition, *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008) 157006.
- [126] M. Delheusy, A. Stierle, N. Kasper, R.P. Kurta, A. Vlad, H. Dosch, et al., X-ray investigation of subsurface interstitial oxygen at Nb/oxide interfaces, *Appl. Phys. Lett.* 92 (2008) 101911.
- [127] A. Bruno, P. Mengucci, L. V. Mercaldo, M.P. Lisitskiy, Superconducting and structural properties of Nb films covered by plasma enhanced chemical vapor deposited a-Si:H layers for superconducting qubit application, *Supercond. Sci. Technol.* 26 (2013) 035004.
- [128] M.P. Sarachik, D.R. He, W. Li, M. Levy, Magnetic properties of boron-doped silicon, *Phys. Rev. B.* 31 (1985) 1469.
- [129] J. Freudenberger, S. Drechsler, G. Fuchs, A. Kreyssig, K. Nenkov, S. V Shulga, et al., Superconductivity and disorder in $\text{YxLu}_{1-x}\text{Ni}_2\text{B}_2\text{C}$, *Phys. C.* 306 (1998) 1.
- [130] G.J.J. Dolan, J. Silcox, Critical thicknesses in superconducting thin films, *Phys. Rev. Lett.* 30 (1973) 603–606.
- [131] C. Peroz, C. Villard, Flux flow properties of niobium thin films in clean and dirty superconducting limits, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* 72 (2005) 1–6. doi:10.1103/PhysRevB.72.014515.
- [132] A.S. Sidorenko, C. Sürgers, H. V. Löhneysen, Perpendicular upper critical field of a proximity-coupled superconducting film, *Phys. C.* 370 (2002) 197.

- [133] T.P. Orlando, E.J. McNiff, S. Foner, M.R. Beasley, Critical fields, Pauli paramagnetic limiting, and material parameters Nb₃Sn and V₃Si, Phys. Rev. B. 19 (1979) 4545.
- [134] E.W. Collings, Applied Superconductivity, Metallurgy, and Physics of Titanium Alloys, Plenum Press, New York, 1985.
- [135] E. Katzir, S. Yochelis, F. Zeides, N. Katz, Y. Kalcheim, O. Millo, et al., Increased superconducting transition temperature of a niobium thin film proximity coupled to gold nanoparticles using linking organic molecules, Phys. Rev. Lett. 108 (2012) 107004.
- [136] X. Montiel, A.I. Buzdin, Field-induced superconducting phase in superconductor-normal metal and superconductor-superconductor bilayers, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. 84 (2011) 054518.

APÊNDICE A – EFEITO MEISSNER PARAMAGNÉTICO EM $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ DEVIDO A PRESENÇA DE NANOPARTÍCULAS DE Ba_2YTaO_6

O trabalho intitulado “Paramagnetic moments in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ nanocomposite films” trata do estudo de magnetização em filmes finos de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ com nanopartículas de Ba_2YTaO_6 dispersas. As medidas de magnetização foram feitas usando um magnetômetro SQUID e um VSM. Momentos magnéticos foram medidos como função da temperatura usando as prescrições ZFC e FC para campos magnéticos maiores que 1 T aplicados perpendicular e paralelo ao plano ab. A resposta paramagnética relacionada ao estado supercondutor foi observada durante os experimentos FC. Este efeito, conhecido como Efeito Meissner Paramagnético (PME), aparentemente aumenta quando o campo magnético é aumentado. Os resultados foram discutidos em termos da forte ancoragem modulada pelas nanopartículas de Ba_2YTaO_6 dispersas na matriz supercondutora.

A Figura 62 mostra um resultado representativo que ilustra o procedimento experimental, onde os processos ZFC e FC foram realizados em sequência. Neste caso um campo magnético de 1 T foi aplicado na direção do eixo c e o resultado mostra claramente um momento paramagnético abaixo da temperatura crítica durante o processo FC, caracterizando o PME.

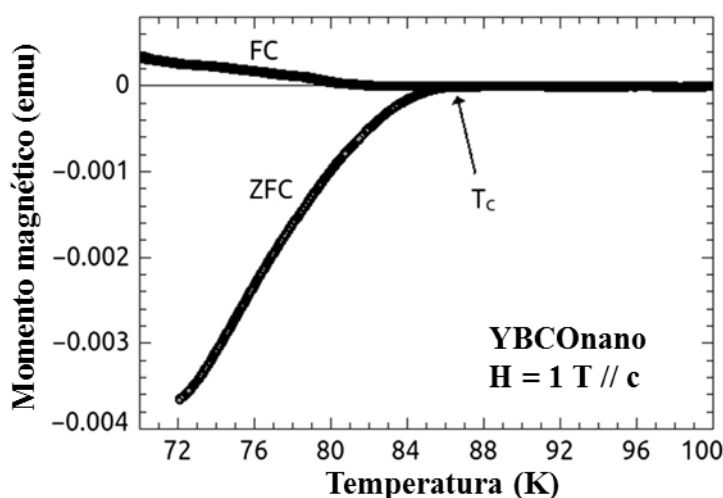


Figura 62: Medidas ZFC e FC realizadas na amostra para campo magnético de 1 T aplicado ao longo do eixo c . Um estado paramagnético é claramente observado abaixo da temperatura crítica durante o processo FC, caracterizando o PME.

A Figura 63 mostra o momento magnético da FC em função da temperatura, quando o campo magnético é aplicado ao longo do plano *ab*. Na Figura 2(a) os momentos paramagnéticos podem ser vistos para campos de 0,05 T até 1 T. Observa-se que o PME aumenta com o aumento do campo magnético. A Figura 2(b) mostra que o PME persiste mesmo para campo magnético de 10 T aplicado ao longo do plano *ab*. Este resultado consiste na primeira observação experimental do PME nesta faixa de campo para um filme fino supercondutor.

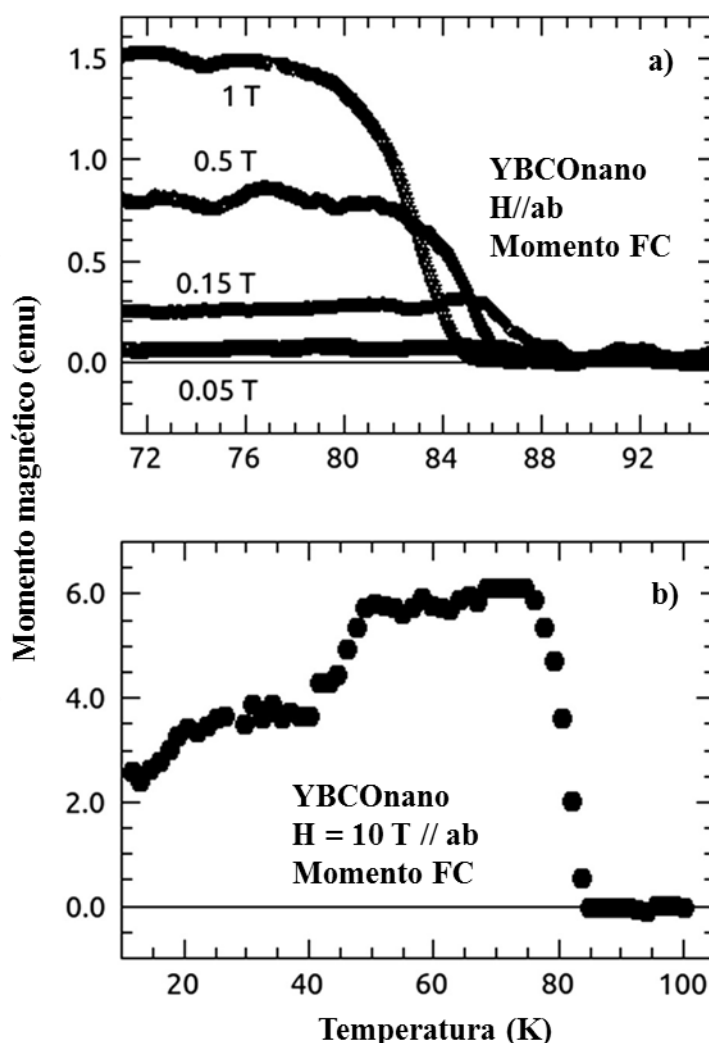


Figura 63: a) Momento magnético FC em função da temperatura para campos magnéticos de 0,05 T até 1 T, aplicados ao longo do plano *ab*. Momentos paramagnéticos podem ser observados, caracterizando o PME. b) O estado paramagnético persiste em campo magnético tão alto quanto 10 T.

A Figura 64 mostra resultados similares para campos magnéticos de 0,15 T a 3 T, aplicados ao longo do eixo *c*. Para o campo de magnitude de 0,15 T a resposta é

diamagnética, contudo, quando o campo magnético é aumentado a resposta paramagnética aparece. Neste caso o PME também é reforçado pelo campo magnético, no entanto, para o campo magnético de 3 T o momento paramagnético aparentemente diminui em comparação com os resultados em 1 T e 2 T.

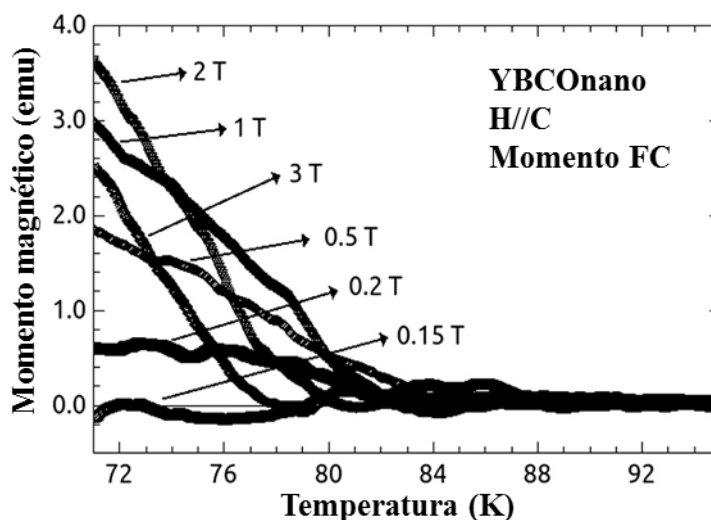


Figura 64: Momento magnético FC como função da temperatura para campos magnéticos de 0,15 T até 3 T, aplicados ao longo do eixo c. O PME aumenta com o aumento do campo magnético, contudo, para um campo magnético maior que 3 T o efeito mostra um aparente redução.

A Figura 65, baseada nas Figuras 63 e 64, mostra o momento magnético FC em função do campo magnético para uma temperatura fixa. Os resultados apontam para a possibilidade de saturação do PME. Este resultado parece indicar que sob altos campos magnéticos o PME e, conseqüentemente, o estado de compressão de fluxo podem colapsar restaurando a resposta diamagnética devido à enorme compressão dos vórtices dentro da amostra.

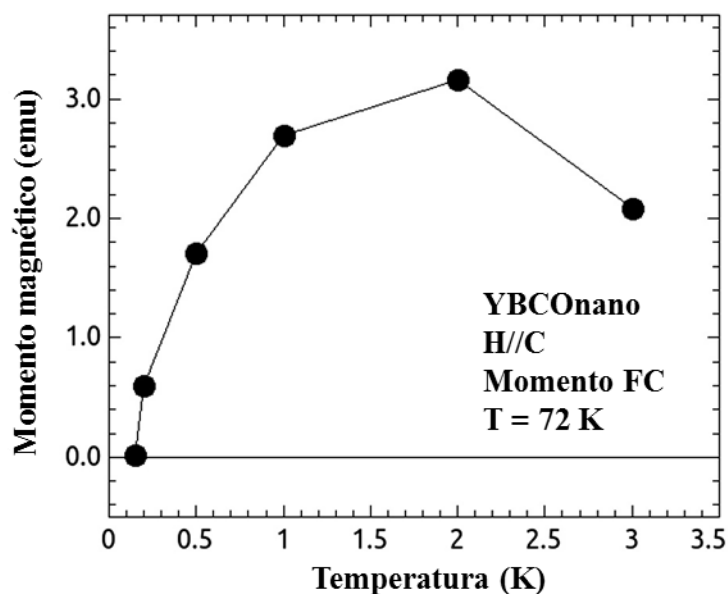


Figura 65: Momento magnético FC em função do campo magnético em 72 K e para H//c, baseado nos resultados da Fig. 63. Os resultados mostra uma aparente tendência à saturação do PME.

Os dados sugerem um PME de alto campo que pode ser descrito pelo modelo de compressão de fluxo [28], onde as nanopartículas de Ba_2YTaO_6 podem atuar como centros de ancoragem estabilizando o fluxo comprimido. O PME persiste mesmo para campos tão altos quanto 10 T e a tendência de saturação do PME pode ser observada, sugerindo que o estado de fluxo comprimido pode colapsar em altos campos magnéticos.