

**UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA “JÚLIO DE MESQUITA FILHO”
Programa de Pós-graduação em Ciência e Tecnologia de Materiais
CAMPUS DE BAURU
FACULDADE DE CIÊNCIAS**

Anne Hitomi Yonamine

**ESTUDO DA INTERAÇÃO ENTRE CAMADAS DE SUPER-REDES
SUPERCONDUTOR/ISOLANTE/FERROMAGNETO**

Bauru

2014

Anne Hitomi Yonamine

ESTUDO DA INTERAÇÃO ENTRE CAMADAS DE SUPER-REDES
SUPERCONDUTOR/ISOLANTE/FERROMAGNETO

Tese apresentada ao Programa de Pós-graduação em Ciência e Tecnologia de Materiais para a obtenção do Título de Doutor em Ciência e Tecnologia de Materiais, sob orientação da Prof. Dra. Dayse Iara dos Santos.

Bauru

2014

Yonamine, Anne Hitomi.

Estudo da interação entre camadas de super-redes supercondutor/isolante/ferromagneto / Anne Hitomi Yonamine, 2014.

162 f. : il. (CDROM)

Orientador: Dayse Iara dos Santos

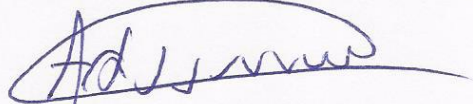
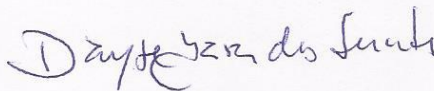
Tese (Doutorado) – Universidade Estadual Paulista. Faculdade de Ciências, Bauru, 2014

1. Heteroestruturas epitaxiais. 2. Interação supercondutor-ferromagneto. 3. Super-redes SC/isolante/FM. 4. YBCO. 5. LCMO. 6. STO. 7. CeO₂. 8. PBCO. I. Universidade Estadual Paulista. Faculdade de Ciências. II. Título.

ATA DA DEFESA PÚBLICA DA TESE DE DOUTORADO DE ANNE HITOMI YONAMINE, DISCENTE DO PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA DE MATERIAIS, DO(A) FACULDADE DE CIÊNCIAS DE BAURU.

Aos 29 dias do mês de maio do ano de 2014, às 14:00 horas, no(a) Anfiteatro da Pós-graduação/FC, reuniu-se a Comissão Examinadora da Defesa Pública, composta pelos seguintes membros: Profa. Dra. DAYSE IARA DOS SANTOS do(a) Departamento de Física / Faculdade de Ciências de Bauru, Prof. Dr. ADILSON JESUS APARECIDO DE OLIVEIRA do(a) Departamento de Física / Universidade Federal de São Carlos, Profa. Dra. RAQUEL DE ALMEIDA RIBEIRO do(a) Universidade Federal do ABC, Prof. Dr. ANTONIO RENATO BIGANSOLLI do(a) Instituto de Ciências Exatas / Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro, Prof. Dr. JOSE HUMBERTO DIAS DA SILVA do(a) Departamento de Física / Faculdade de Ciências de Bauru, sob a presidência do primeiro, a fim de proceder a arguição pública da TESE DE DOUTORADO de ANNE HITOMI YONAMINE, intitulada "ESTUDO DA INTERAÇÃO ENTRE CAMADAS DE SUPER-REDES SUPERCONDUTOR/ISOLANTE/FERROMAGNETO". Após a exposição, a discente foi arguida oralmente pelos membros da Comissão Examinadora, tendo recebido o conceito final: Aprovado. Nada mais havendo, foi lavrada a presente ata, que, após lida e aprovada, foi assinada pelos membros da Comissão Examinadora.

Profa. Dra. DAYSE IARA DOS SANTOS



Prof. Dr. ADILSON JESUS APARECIDO DE OLIVEIRA

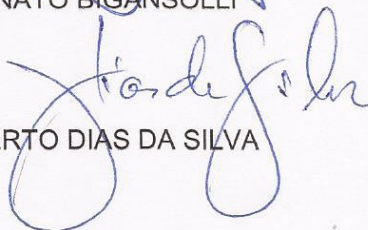


Profa. Dra. RAQUEL DE ALMEIDA RIBEIRO

Prof. Dr. ANTONIO RENATO BIGANSOLLI



Prof. Dr. JOSE HUMBERTO DIAS DA SILVA



Dedico este trabalho aos meus pais, Mário e Nevinha,
a quem lhes devo a vida.

AGRADECIMENTOS

Aos meus pais Mário e Nevinha por todo o apoio ao longo de toda minha vida, seja ele o amor, o carinho, a educação, o incentivo, o patrocínio, e tudo o mais de bom, sem esquecer as broncas e puxões de orelha no decorrer do caminho que também serviram de aprimoramento pessoal.

À minha orientadora, minha mestre acadêmica, Prof^a. Dayse Iara dos Santos por de fato me orientar, e também pela dedicação, paciência, incentivo, amizade, hospitalidade, algumas broncas merecidas, e principalmente pelos ensinamentos científicos acumulados até hoje.

Ao meu mestre da vida, Dr. Daisaku Ikeda e também à sua esposa, Sra. Kaneko, por todos os incentivos em prol da vida, da dignidade humana e principalmente da paz.

Aos meus irmãos Felipe e Fábio por desde cedo me fazer aprender a viver em sociedade e também por todos os momentos de apoio, diversão, confissão, orientação, cumplicidade e também os de estresse que toda irmandade tem.

À minha amiga e companheira Francine, por todo amor, paciência, carinho e encorajamento. E também à sua família que sempre me acolheu.

A todos os meus familiares que mesmo distante, sempre apoiaram e incentivaram meu desenvolvimento pessoal e profissional. Aqui também cabem os amigos queridos distantes de longas datas.

Aos prof. Dr. Adilson J. A. de Oliveira e José Humberto D. da Silva pela participação em minha qualificação. Ao professor Adilson por acrescentar conhecimento de magnetismo e ao professor Humberto e ao seu grupo (Ziani e Nilton), por todos os esclarecimentos relacionados à filmes finos. Também, agradecer aos mesmos pela participação em minha defesa, e também à prof^a. Dr^a Raquel Ribeiro e prof. Dr Antonio Biganzolli.

Aos meus professores da graduação e da pós-graduação aos quais a maioria das vezes sempre estiveram dispostos a ajudar. Em especial os Profs. Dayse, Rosa, Scalvi, Sardella, por acrescentar conhecimento científico à minha vida.

Aos meus amigos da física “Turma do Barquinho”, e também os da pós-graduação, por todo apoio e paciência. Em especial os amigos Luciano, Rafael, Joelma, Natacha e Larisa por toda ajuda e camaradagem.

Ao POSMAT pela oportunidade da pós-graduação e também pelo apoio financeiro da bolsa CNPq que me foi concedida no último ano.

Aos técnicos da Central de Laboratórios de Pesquisa Carlos, Willians e Márcio pela colaboração e por sempre estarem dispostos a prestar seus serviços.

Ao meu amado grupo horizontal do budismo Nitiren, Taiga, por todo desenvolvimento humano que me é proporcionado. E também ao Distrito Castelo Branco e todos os seus componentes, que me forjaram como valor humano.

Aos meus amigos pessoais Mara, Marlene, Patrik, Vinícius, Débora, Tatiane, Patrícia, Rayra, Verônica, por todos os momentos de compreensão, desabafo, conselho e puxões de orelha, que não me deixaram desistir nos momentos de dificuldade, essenciais para meu aperfeiçoamento interno.

Às secretárias do POSMAT, Andressa, Gethiely, Denise e Carô, por sempre estarem dispostas a esclarecer o que quer que seja.

Ao Prof. Alexey Pan e ao seu grupo (Olga, Sergey, Nandha, Bradley, David, Steve, Hanan, Igor) do Institute for Superconducting and Electronic Materials (ISEM – Austrália), que disponibilizaram tempo e disposição para me ajudar no período sanduíche do meu doutorado. Especialmente à Olga e ao Sergey, por todo esforço.

Aos brasileiros que conheci na Austrália, em especial aos que por um período foram a minha família Danilo, Sara Dafé, Lili, Sara Akemi e Luiz, bolsistas sem fronteira.

Aos amigos aussie que fiz Kate, Janys, Irit, Corina, Joy, Jimmy, Bradley, Matiko, Tage, Siggy, Noga, Andreja and Lisa.

A todos, meu muito obrigado.

*"Não faz mal que seja pouco,
O que importa é que o avanço de hoje
seja maior do que o de ontem,
Que nossos passos de amanhã,
sejam mais largos do que os de hoje."*

Daisaku Ikeda

RESUMO

O supercondutor (SC) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) foi descoberto em 1986, e desde então tem sido amplamente estudado em suas diversas formas e propriedades. Dentre suas várias características, sua alta temperatura crítica é uma das mais importantes na ciência e na tecnologia. Atualmente existem vários dispositivos baseados no YBCO. As heteroestruturas do tipo SC/FM, onde FM representa uma camada ferromagnética, criadas nas últimas décadas, constituem uma das mais interessantes formas de aplicação deste material. Estas são altamente promissoras para o desenvolvimento de dispositivos spintrônicos que exploram as propriedades dos spins dos elétrons. Neste trabalho o foco foi estudar os efeitos das interações entre a camada de YBCO e a do ferromagneto $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ em super-redes intermediadas por camadas de diferentes espessuras de determinados materiais isolantes. Os materiais isolantes testados foram o SrTiO_3 (STO), o CeO_2 e o $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$. As super-redes foram fabricadas pela técnica PLD com parâmetros otimizados. Algumas das características foram determinadas por meio de medidas de DRX, MEV, EDS, de magnetização e de transporte. Estruturalmente, as super-redes apresentaram integridade de composição e cristalinidade com crescimento preferencial na direção c . As imagens de MEV confirmaram o crescimento epitaxial das camadas, e o EDS sua composição. As medidas de magnetização mostraram o grau de qualidade e o comportamento da super-rede que resulta da interação ou desacoplamento eletrônico das camadas SC e FM quando uma camada isolante é inserida entre elas. A mesma análise foi feita nas medidas de transporte. As super-redes $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{ISO}_{d\text{l}}/\text{LCMO}_{10\text{nm}})_{\times 20}$ apresentaram comportamento predominantemente supercondutor. Enquanto as super-redes $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{ISO}_{d\text{l}}/\text{LCMO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$ apresentaram oscilações das temperaturas crítica e de Curie assim como magnetização e resistividade não usuais dependendo do isolante e de sua espessura. O STO atuou como um isolante eficiente entre as camadas SC e FM, resultando em super-redes de comportamento modulado pelo supercondutor. Porém, as super-redes com os isolantes CeO_2 e PBCO exibiram comportamentos inesperados e fenômenos novos, tais como a magnetoresistência colossal (CMR) dependente do material e da espessura da camada isolante; e os vales de resistividade abaixo da transição supercondutora. Os dados aqui apresentados poderão contribuir para o *design* de novos dispositivos spintrônicos baseados em arquiteturas de heteroestruturas SC/ISO/FM (*tuning*).

PALAVRAS CHAVE: Heteroestruturas epitaxiais YBCO/LCMO, interação supercondutor-ferromagneto, super-redes SC/ISOLANTE/FM, YBCO, LCMO, STO, CeO_2 , PBCO.

ABSTRACT

The superconducting (SC) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) was discovered in 1986, and since then it has been widely studied in its various forms and properties. Among its many features, its high critical temperature is one of the most important in science and technology fields. Currently there are several devices based on YBCO. The SC/FM heterostructures, where FM is a ferromagnetic layer, created in recent decades, is one of the most interesting ways of applying this material. These are highly promising for the development of spintronic devices exploiting the properties of electron spins. In this work the focus was to study the effects of interactions between the YBCO layer and the ferromagnet $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ in superlattices mediated by layers of different thicknesses of certain insulating materials. The tested insulating materials were SrTiO_3 (STO), CeO_2 and $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$. The superlattices were fabricated by PLD technique with optimized parameters. Some of the features were determined by measurements of XRD, SEM, EDS, magnetization and electric transport. Structurally, the superlattices showed integrity of composition and crystallinity with preferential growth in the *c*-direction. The SEM images confirmed the epitaxial growth of the layers, and the EDS confirmed the composition. The magnetization measurements showed the quality and behavior of the superlattices which results from the interaction or uncoupling of SC and FM layers when an insulating layer is inserted between them. The same analysis was done in transport measurements. The superlattices $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{ISO}_{\text{dl}}/\text{LCMO}_{10\text{nm}})_{\times 20}$ showed predominantly superconducting behavior. While $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{ISO}_{\text{dl}}/\text{LCMO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$ superlattices showed oscillations on critical and Curie temperatures as well as unusual magnetization and resistivity which depended on the insulation and its thickness. The STO acted as an efficient insulator between the SC and FM layers, resulting in superlattices modulated by the superconducting behavior. However, the superlattices with insulating PBCO and CeO_2 exhibited unexpected behavior and new phenomena such as colossal magnetoresistance (CMR) dependent on the material and thickness of the insulating layer; and spike of resistivity below the superconducting transition. The data presented here may contribute to the design of new spintronic devices based on SC/ISO/FM heterostructures architectures (tuning of properties).

KEYWORDS: YBCO/LCMO epitaxial heterostructures, superconductor-ferromagnet interaction, SC/INSULATOR/FM superlattices, YBCO, LCMO, STO, CeO_2 , PBCO.

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

a_0 – Parâmetro de rede

B – Campo magnético induzido.

BCS – Teoria da supercondutividade proposta por Bardeen, Cooper e Schrieffer.

CE – (CeO₂) Óxido de cério.

CMR – Magnetoresistência Colossal (*Colossal Magneto-Resistance*).

d_F – Espessura da camada ferromagnética.

d_I – Espessura da camada isolante.

d_S – Espessura da camada supercondutora.

FC – “Field Cooling”, resfriado na presença de campo magnético.

FM – Ferromagnético/Ferromagneto.

LTS – “Low T_c Superconductor”, Supercondutor de baixa T_c .

H_c – Campo magnético crítico.

HTS – “High T_c Superconductor”, supercondutor de alta T_c .

ISO – Isolante.

J_c - Densidade de corrente crítica.

LCMO – ($La_{2/3}Ca_{1/3}MnO_3$) Manganita de lantânio e cálcio.

MEV – Microscopia Eletrônica de Varredura.

MIT – Transição metal-isolante.

PBCO – ($PrBa_2Cu_3O_{6+\delta}$) Óxido de praseodímio, bário e cobre.

PLD – *Pulsed Laser Deposition* (Deposição por laser pulsado)

PM – Paramagnético.

PME – Efeito Paramagnético Meissner (*Paramagnetic Meissner Effect*).

SC – Supercondutor/Supercondutividade.

LSMO – ($La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$) Manganita de lantânio e estrôncio.

STO – (SrTiO₃) Titanato de estrôncio.

T_c – Temperatura crítica.

T_{Curie} – Temperatura de Curie.

ξ_0 – Comprimento de coerência.

ξ_{FM} – Comprimento de difusão de spin do ferromagneto.

ξ_{prox} – Comprimento de decaimento do parâmetro de ordem do supercondutor.

ξ_{SC} – Comprimento de coerência do supercondutor.

YBCO – (YBa₂Cu₃O_{7- δ}) Cuprato de bário e ítrio (supercondutor).

ZFC – “Zero Field Cooling”, resfriado na presença de campo magnético nulo.

Sumário

1 INTRODUÇÃO	14
1.1 Contextualização	14
1.2 Objetivos	16
2 MATERIAIS E HETEROESTRUTURAS	17
2.1 Perovskita	17
2.2 YBCO	18
2.3 LCMO	21
2.4 PBCO	23
2.5 STO	25
2.6 CeO ₂	26
2.7 Super-redes	27
2.8 ESTADO DA ARTE: Heteroestruturas YBCO/LCMO	28
3 TÉCNICAS DE CARACTERIZAÇÃO	56
3.1 Medidas magnéticas	56
3.2 Medidas elétricas	64
4 METODOLOGIAS	66
4.1 Deposição de Filme Fino YBCO por PLD	66
4.2 Super-redes – S//F	72
4.3 Caracterizações	72
4.3.1 Difração de Raios X	72
4.3.2 Microscopia	72
4.3.3 Litografia (Gravura) e Perfilometria	73
4.3.4 Medidas Magnéticas e Elétricas	75
5 RESULTADOS	78
5.1 Difração de Raios X	78
5.2 Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV)	85
5.3 Medidas Magnéticas	94
5.3.1 Super-redes (YBCO _{dS} /STO _{dI} /LCMO _{dF}) _{X20} com d _S = 20nm e d _F = 10nm	94
5.3.2 Super-redes (YBCO _{dS} /STO _{dI} /LCMO _{dF}) _{X20} com d _S = 20nm e d _F = 20nm	97
5.3.3 Super-redes (YBCO _{dS} /CE _{dI} /LCMO _{dF}) _{X20} com d _S = 20nm e d _F = 20nm	100
5.3.4 Super-redes (YBCO _{dS} /PB _{dI} /LCMO _{dF}) _{X20} com d _S = 20nm e d _F = 20nm	102
5.3.5 Comparação entre super-redes com isolantes de espessuras de 4nm e 8nm	105
5.3.6 Medidas de histerese magnética	110

5.4 Medidas Eléctricas	123
5.4.1 Super-redes (YBCO _{dS} /STO _{dI} /LCMO _{dF}) _{X20} com d _S = 20nm e d _F = 10nm.....	123
5.4.2 Super-redes (YBCO _{dS} /STO _{dI} /LCMO _{dF}) _{X20} com d _S = 20nm e d _F = 20nm.....	126
5.4.3 Super-redes (YBCO _{dS} /CE _{dI} /LCMO _{dF}) _{X20} com d _S = 20nm e d _F = 20nm.....	129
5.4.4 Super-redes (YBCO _{dS} /PB _{dI} /LCMO _{dF}) _{X20} com d _S = 20nm e d _F = 20nm	133
5.4.5 Análise comparativa do modelo proposto por FEDOSEEV <i>et al.</i> , (2013).....	139
5.4.6 Magnetoresistência das super-redes	144
6 CONCLUSÕES	149
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	152
PUBLICAÇÕES	162

1 INTRODUÇÃO

1.1 Contextualização

Nos últimos anos estudiosos da área de supercondutividade têm criado protótipos e estudado dispositivos baseados em combinações de diferentes tipos de materiais. Materiais com propriedades tais como as de metais normais, de isolantes, de ferro ou antiferromagnetos e outros têm sido empregados de forma a pertencerem a uma única estrutura composta com materiais supercondutores. Estes estudos têm sido justificados pela busca de efeitos e fenômenos novos e significativos que possam dar origem a dispositivos com aplicações inéditas. Experimentos realizados neste sentido se tornaram realidade graças aos avanços tecnológicos que permitem produzir e avaliar as propriedades de materiais que tenham escalas mesoscópicas.

Alguns destes dispositivos eletrônicos são formados por duas camadas de supercondutor separadas por um isolante ou metal normal (conhecidos como estruturas SIS ou SNS, respectivamente). Estas estruturas formam as junções Josephson, causando o efeito de proximidade entre as duas camadas supercondutoras, onde a amplitude da função de onda dos pares de Cooper flui pela camada metálica (ESCHRING, 2011). Existem também as válvulas de spin, que possuem configuração similar aos dispositivos supercondutores, porém são compostos por duas camadas de FM separadas por um SC ou isolante. (FLOKSTRA *et al.*, 2014)

O efeito de proximidade entre o SC e o FM vem sendo extensamente estudado, com o objetivo de esclarecer a interação entre os spins singlet dos pares de Cooper que estão eletronicamente pareados, e os spin singlet paralelamente ordenados do SC e FM, respectivamente. Em sua interface existem vários fenômenos tais como tensão, magnetismo, transferência de carga, coerência supercondutora, etc. que influenciam estes fenômenos. (CHIEN *et al.*, 2013)

O esclarecimento destes fenômenos pode fornecer um novo método de projetar dispositivos spintrônicos (ZHANG *et al.*, 2013). Segundo VISANI;

CRASSOUS; VILLEGAS (2013), a transferência de propriedades físicas entre o SC e o FM têm alto potencial em aplicação na nova spintrônica supercondutora, na eletrônica e na microeletrônica supercondutora. (ZHANG *et al.*, 2009) (BLAGOEV *et al.*, 2013)

As pesquisas sobre super-redes compostas pelo supercondutor de alta T_c (YBCO) e pelo ferromagneto (LCMO), que apresenta magnetoresistência colossal (CMR), vêm mostrando fenômenos interessantes, tais como o efeito de proximidade (PEÑA *et al.*, 2004) (WERNER *et al.*, 2010), o efeito Meissner paramagnético (LÓPEZ DE LA TORRE *et al.*, 2006) e outros.

Segundo FEDOSEEV *et al.* (2013), super-redes de cupratos supercondutores de alta T_c e ferromagnetos que apresentam CMR são de grande interesse da spintrônica. Entretanto, até então não haviam resultados de CMR abaixo da transição supercondutora, em super-redes do tipo SC/FM, mais especificamente para caso YBCO/LCMO.

Por outro lado, SOLTAN *et al.* (2005) em seu estudo de *bi-layer* de LCMO_{50nm}/YBCO_{100nm} utilizou uma camada intermediária de STO de 5nm, e mostrou que o isolante atua como desacoplador de interações eletrônicas responsáveis por vários tipos de efeitos.

No presente trabalho, de maneira inédita, é feito um estudo da inserção de diferentes tipos e espessuras de camadas isolantes entre camadas SC e FM de super-redes. Neste foram avaliadas e comparadas as propriedades estruturais, magnéticas e elétricas de super-redes construídas com e sem a inserção de camadas isolantes.

Alguns dos diversos estudos realizados nesta área são resumidos no Capítulo 2 deste trabalho. Enquanto que a descrição da confecção das amostras e apresentação dos resultados das suas caracterizações são apresentados e analisados nos Capítulos 4 e 5, respectivamente. Um resumo das realizações e a análise final são encontrados no Capítulo 6.

1.2 Objetivos do trabalho

O trabalho aqui apresentado teve por objetivo realizar as primeiras investigações dos efeitos da interação magnética e elétrica entre as camadas supercondutoras e ferromagnéticas intermediadas por isolantes em super-redes do tipo $(\text{LCMO}_{10\text{nm}}/\text{STO}_{d\text{l}}/\text{YBCO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$ e $(\text{LCMO}_{20\text{nm}}/\text{Isolante}_{d\text{l}}/\text{YBCO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$, onde as espessuras ($d\text{l}$) dos isolantes STO, CeO_2 e PBCO, foram de 2, 4 e 8nm e, eventualmente, de 0,5nm, 16nm e 20nm. Estas investigações tiveram como objetivo contribuir para a geração de novos dispositivos por *design* de arquiteturas de heteroestruturas YBCO/ISOLANTE/LCMO (*tuning*).

2 MATERIAIS E HETEROESTRUTURAS

2.1 Perovskita

Perovskita é o nome dado ao grupo de cristais que são descritos na forma ABO_3 . O primeiro composto a ser descoberto com esta estrutura foi o $CaTiO_3$, pelo mineralogista Lev A. Perovski (1792-1856). Assim, tanto o composto $CaTiO_3$ quanto o seu arranjo cristalino receberam este nome. A Figura 1.1 mostra a estrutura cristalográfica de uma perovskita ideal ABO_3 , onde o cátion A ocupa o centro do cubo, os cátions B ocupam os vértices e os ânions oxigênicos se localizam no centro de cada aresta do cubo. O cátion maior (A) está coordenado a 12 íons de oxigênio, enquanto que o cátion menor (B) está coordenado por 6 íons de oxigênio. (TONIOLO, 2010)

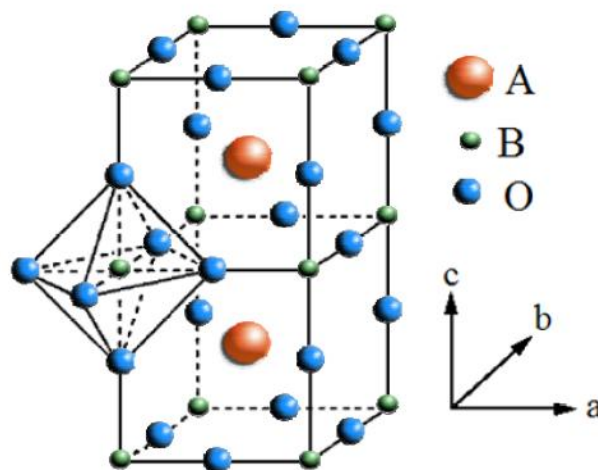


Figura 2.1: Estrutura ideal da perovskita ABO_3 . (TONIOLO, 2010)

Há dois tipos de deficiência que tornam a perovskita não estequiométrica, a de oxigênio e a de cátion. A perovskita com deficiência de oxigênio pode ser descrita de uma forma geral como $A_nB_nO_{3n-1}$, que está relacionada ao seu número de cátions. Não excluindo os casos onde há excesso de oxigênio, porém, estes casos são termodinamicamente desfavoráveis. As perovskitas não estequiométricas de cátions ocorrem quando há a ausência de um cátion A ou B em um de seus sítios. (PEÑA; FIERRO, 2001)

As perovskitas apresentam diversas propriedades físicas importantes como a ferroeletricidade (BaTiO_3), o ferromagnetismo (SrRuO_3), o ferromagnetismo fraco (LaFeO_3), a alta condutividade térmica (LaCoO_3), a fluorescência ($\text{LaAlO}_3:\text{Nd}$), a termoeletricidade de alta temperatura (La_2CuO_4), a supercondutividade ($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$), entre outras. (PEÑA; FIERRO, 2001)

A propriedade magnética deve-se à valência do cátion que sofre interação através de seus oxigênios compartilhados. A classificação magnética depende do arranjo de spins, isto é, a propriedade magnética como a ferromagnética, ferrimagnética, diamagnética, etc, depende do efeito coletivo dos spins. Suas propriedades elétricas podem ser classificadas como dielétricas, metálicas e isolantes. Há ainda as perovskitas que dependem das camadas de elétrons mais externas para conduzirem. O mecanismo de condução é atribuído a presença de elétrons na banda de condução, íons de alta mobilidade, no caso de semicondutores do tipo p. No caso de supercondutores, a valência mista do cobre e a característica bidimensional da estrutura, onde os planos CuO_2 são menos sensíveis à impurezas e a defeitos, são alguns dos atributos necessários para a existência da supercondutividade (LABBÉ; BOK, 1987). Algumas perovskitas possuem propriedades ópticas interessantes, pois o ordenamento magnético do íon de transição B pode ser estudado com o íon A (terra-rara). A variação do ordenamento magnético de cada íon com a temperatura provoca uma interação que pode ocorrer no infra vermelho, visível e ultravioleta. (PEÑA; FIERRO, 2001)

2.2 O supercondutor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO)

Desde a descoberta da supercondutividade no óxido de ítrio, bário e cobre, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ – YBCO (WU *et al.*, 1987), este material tem sido extensivamente estudado, devido a sua T_c de 89-90K quando δ é aproximadamente 0,1. A temperatura de transição o torna altamente atrativo sob o ponto de vista econômico pois o resfriamento para observar o fenômeno é feito apenas com nitrogênio líquido. Como a maioria dos óxidos supercondutores, ou cupratos, o YBCO possui uma estrutura formada da união de três unidades de perovskitas empilhadas na direção c , a saber BaCuO_3 , YCuO_2 , BaCuO_2 . Sua estrutura cristalina pode ser tetragonal ou

ortorrômbica (POOLE JR *et al.*, 2007). A Figura 1.2 ilustra duas células unitárias do YBCO, para os casos de estequiometria $\delta = 1$ e $\delta = 0$, $YBa_2Cu_3O_6$ e $YBa_2Cu_3O_7$, respectivamente. No primeiro caso a estrutura é tetragonal e sua propriedade é isolante. Para o caso $YBa_2Cu_3O_7$, sua estrutura é ortorrômbica e apresenta o fenômeno da supercondutividade. Seus respectivos parâmetros de rede estão descritos na Tabela 1.1.

Os planos de CuO_2 são os principais responsáveis pelo fenômeno da supercondutividade, pois é neles que diz-se encontrar os pares de Cooper. Os portadores de carga se encontram neste plano, o que aumenta a anisotropia da estrutura, que apresenta pouca condução na direção c . (PANG, 2004)

A estequiometria de oxigênio do YBCO é um dos fatores mais importantes e determina a qualidade da fase supercondutora. Segundo SOLTAN (2005), adicionar oxigênio a esta perovskita forma cadeia de CuO , o que atrai oxigênio dos planos de CuO_2 tornando-o condutor. A equação correta é $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$, onde $6+\delta$ corresponde a concentração de oxigênio. Para valores de $\delta < 0,3$, sua estrutura tetragonal apresenta propriedade isolante, para valores de $\delta > 0,3$, sua estrutura ortorrômbica apresenta propriedade supercondutora. A Figura 1.3 ilustra a variação da temperatura de transição supercondutora em função do valor de δ , a fração de concentração de oxigênio acima de 6. (BENNEMANN; KETTERSON, 2008).

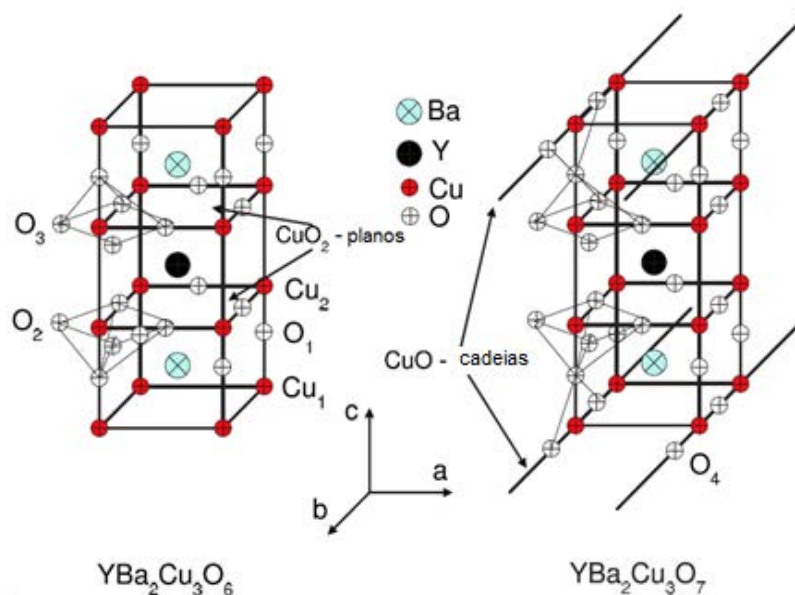


Figura 2.2: A estrutura tetragonal do $YBa_2Cu_3O_6$ e a estrutura ortorrômbica do $YBa_2Cu_3O_7$. (SOLTAN, 2005)

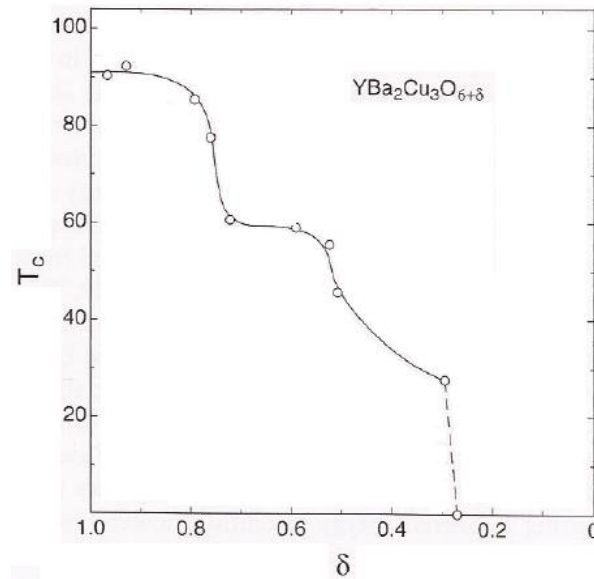


Figura 2.3: Variação da temperatura crítica (T_c) em função da fração δ de concentração de oxigênio. (BENNEMANN; KETTERSON, 2008)

A Tabela 1.1 apresentam os parâmetros mais importantes do supercondutor $YBa_2Cu_3O_7$. Nesta destaca-se o pequeno comprimento de coerência, em média $\xi_{ab} \approx 1nm$, comparável ao tamanho da cela unitária, o que implica em grandes consequências físicas para estes óxidos supercondutores. O comprimento de coerência determina a maior parte das suas propriedades e o fato de possuir um valor pequeno, implica em considerar o YBCO como um supercondutor do Tipo II, com elevado campo crítico superior, H_{c2} .

Tabela 1.1: Lista de parâmetros do YBCO – $YBa_2Cu_3O_7$. (POOLE; FARACH; CRESWICK, 1995)

PARÂMETRO	VALORES EXPERIMENTAIS
Temperatura Crítica	$T_c = 89-90K$
Rede Ortorrômbica	$a = 3,83nm$
	$b = 3,88nm$
	$c = 11,68nm$
Resistividade (100K)	$\rho_{ab} = 70 - 250 \mu\Omega cm$ $\rho_c = 9 - 18 \mu\Omega cm$

Densidade de Corrente Crítica	$J_c(4,2K) = 6 \times 10^7 \text{ A/cm}^2$ $J_c(77K) = 5 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$
Comprimento de Coerência	$\xi_{ab} = 1,2 - 4,3 \text{ nm}$ $\xi_c = 0,2 - 0,8 \text{ nm}$
Profundidade de Penetração	$\lambda_{ab} = 26 - 260 \text{ nm}$ $\lambda_c = 125 - 550 \text{ nm}$
Parâmetro de Ginzburg-Landau	$\kappa = \frac{\lambda}{\xi} \approx 95$
Gap de energia	$2\Delta_0 = 30 \text{ meV}$

2.3 A Manganita $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ (LCMO)

O $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ possui uma cela unitária ortorrômbica, pertencente ao grupo espacial Pbnm, com parâmetros de rede: $a = 5,468 \text{ \AA}$, $b = 5,452 \text{ \AA}$ e $c = 7,722 \text{ \AA}$. Devido à forte deformação das ligações Mn-O-Mn, o parâmetro de aprisionamento de elétrons e a largura de bandas são reduzidas quando comparadas ao composto $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$, que é da mesma família. Este óxido pode ter diferentes estados fundamentais eletrônicos, e também mostra certa tendência a formação de fases ordenadas de orbitais e de cargas. (HOPPLER, 2010)

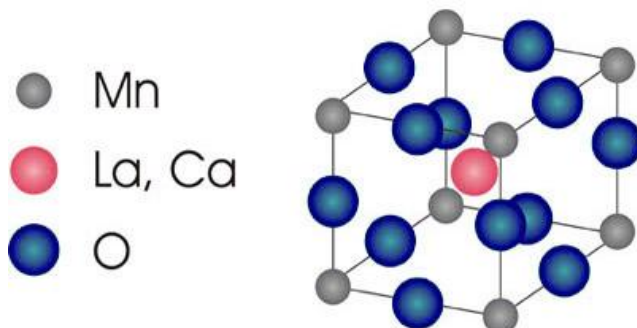


Figura 2.4: A perovskita $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ é formada por três celas (como mostra ao lado), onde duas delas é composta por La e uma é composta por Ca, que se localiza entre as duas que contém La. (Institut für Elektrische Messtechnik, 2014)

Seu diagrama de fase é bastante rico como ilustra a Figura 1.5. Nele observam-se fases com características muito diferentes tais como paramagnética isolante ou metálica, ferromagnética isolante ou metálica, antiferromagnético, etc.

Particularmente o $La_{2/3}Ca_{1/3}MnO_3$ tem características paramagnéticas em temperatura ambiente. Porém, abaixo da temperatura de Curie, $T_{Curie} = 265K$, torna-se um material ferromagnético. Entretanto, PAPAVALASSILIOU *et al.* (2000) mostraram evidências de que surgem outras fases intermediárias (ferromagnética metálica e ferromagnética isolante) até que o material se torne totalmente ferromagnético abaixo de 200K. Há anomalias bem definidas em $x = n/8$ ($n = 1, 3, 5$ e 7). As fases são definidas como: (PM) paramagnética, (FM) metal ferromagnético, (FI) isolante ferromagnético, (AF) antiferromagnético, (CAF) ferromagnético oblíquo e (CO) ordenamento de carga.

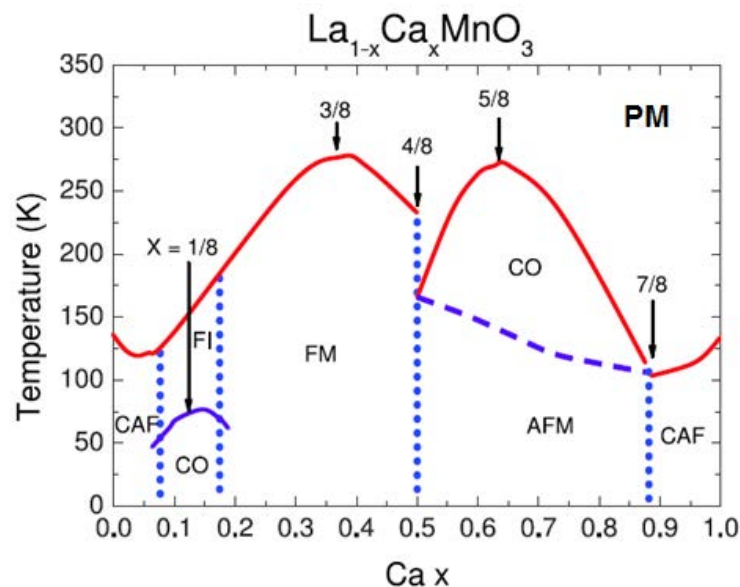


Figura 2.5: Diagrama de fases do $La_{1-x}Ca_xMnO_3$ (CHEONG;HWANG, 2000)

O ferromagnetismo atribuído ao LCMO, com composição de Ca_x que vai de aproximadamente 0,2 a 0,5, conforme Figura 1.5, é atribuída à interação de dupla troca entre os íons Mn^{3+} e o Mn^{4+} . Entretanto, esta interação não é responsável pela Magnetoresistência Colossal (CMR – *Colossal Magneto-Resistance*), mas sim a interação forte elétron-fônon decorrente da distorção Jahn-Teller (YEH *et al.*, 1997). Experimentalmente a CMR é a queda na resistividade nas proximidades de T_{Curie} , quando o material é submetido a um campo magnético. O campo magnético alinha

os spins que estão parcialmente desordenados promovendo a movimentação eletrônica e as interações de troca (SCHIFFER *et al.*, 1995). A Figura 1.6 mostra o resultado experimental da magnetização, resistividade e magnetoresistência, do LCMO submetido à diferentes campos magnéticos como indicado. Com o aumento do campo magnético, é possível observar que a T_{Curie} se desloca para valores mais altos, a resistividade sofre uma queda que permite traçar a curva de magnetoresistência.

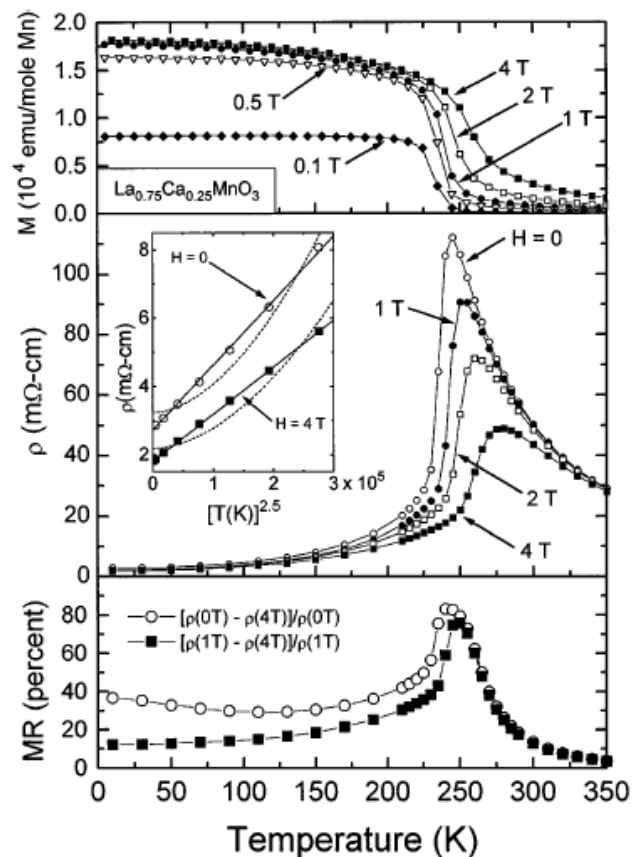


Figura 2.6: Curvas de magnetização (M), Resistividade (ρ) e magnetoresistência (MR) do LCMO, com aplicação de diferentes campos magnéticos, como indicado. (SCHIFFER *et al.*, 1995)

2.4 O Cuprato $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ (PBCO)

A supercondutividade no $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$, onde RE é um elemento das terras raras, com $\delta > 0,5$, foi observada em diversos sistemas poli ou monocristalinos e em filmes finos. O $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ - PBCO, até pouco tempo atrás, era uma exceção

dentre estes sistemas pois não apresentava o estado supercondutor. Porém, recentes estudos apontam que para o caso de uma estrutura perfeita é possível o efeito supercondutor. A não estequiometria com a substituição de Ba no sítio RE, em compostos metaestáveis, também pode apresentar supercondutividade. (LISBOA-FILHO *et al.*, 2000) (YOUNSI;LAHOUBI;SOLTANI, 2012)

O PBCO é muito sensível a qualquer tipo de dopagem, contaminação ou substituição, mas é um material muito estável. A supercondutividade é destruída quando um número considerável de íons Pr ocupam os sítios do Ba, modificando suas propriedades eletrônicas e magnéticas. O comportamento magnético deste material isolante é resultado de momentos magnéticos Cu(2) nos planos CuO₂ que se ordenam antiferromagneticamente quando sob temperatura ambiente. (YOUNSI; LAHOUBI;SOLTANI, 2012)

O material supercondutor PBCO difere do supercondutor YBCO pela sua sensibilidade ao processo de síntese. Mas as múltiplas valências do Pr também pode influenciar nas suas propriedades supercondutoras, embora não esteja claro de que forma. Adiciona-se a isto o fato de não estar esclarecido como os pares de Cooper atuam fora dos planos CuO₂. (PUCH; BAQUERO, 2001)

Na literatura encontra-se muitos estudos de super-redes do tipo YBCO-PBCO, onde o PBCO foi utilizado como material isolante de cada camada do supercondutor YBCO, e que dava origem a alguns efeitos, como o de proximidade e o Josephson. (TRISCONE 24L 24L., 1990) (EOM 24L *al.*, 1991) (SAWADA 24L 24L., 1995) (ZHAO;SHEN;ZHAO, 2000)

Segundo MAZIN (1999), diferentes medidas de densidade de momento eletrônico em YBCO e em PBCO, utilizando espalhamento Compton de alta energia de raios X (SHUKLA *et al.*, 1999), indicam diferentes topologias na superfície de Fermi em acordo com o conceito de diferentes portadores de carga. A indicação é de que a supercondutividade no PBCO origina-se nas cadeias CuO, e não nos planos CuO₂, como ocorre com a maioria dos cupratos. (BLACKSTEAD; DOW, 1995)

2.5 O Titanato SrTiO₃

O SrTiO₃ – chamado STO – possui estrutura perovskita, como ilustra a Figura 1.7, e à temperatura ambiente sua estrutura é pseudo cúbica com parâmetro de rede de 3,905Å, pertencente ao grupo Pnma.

O substrato de STO é muito utilizado para crescimento heteroepitaxial de camadas finas de cupratos supercondutores, manganitas e outros materiais ferroelétricos por possuir alta compatibilidade de parâmetro de rede com estes materiais.

À temperatura ambiente o STO é um material ferroelétrico, em aproximadamente 105K sofre mudança de estrutura, passando de cúbica para tetragonal. Segundo HOPPLER (2010) ainda há pelo menos uma outra transição, que ocorrem em 65K onde começam a aparecer estruturas romboédricas na matriz tetragonal. (LOETZSCH *et al.*, 2010)

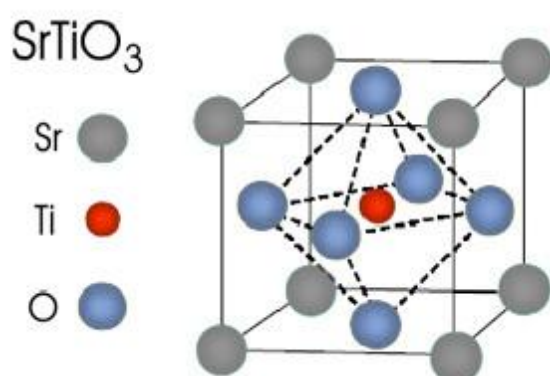


Figura 2.7: Cella unitária do STO em sua fase cúbica. (CORREIA, 2008)

Por ser amplamente utilizado na fabricação de filmes finos, existem estudos relacionado aos efeitos que podem ocorrer em sua superfície onde transições podem ocorrer em 105K. Medidas de difração de raios X sugerem que há uma mistura heterogênea de cristalitos cúbicos e tetragonais, que podem causar fenômenos de relaxações complexas relacionados aos domínios estruturais. (HOPPLER, 2010)

2.6 Óxido CeO₂

O óxido de cério (IV) utilizado neste trabalho possui estrutura cúbica do tipo fluorita (grupo espacial Fm3m), com quatro átomos de cério e oito de oxigênio por cela unitária (Figura 1.8). Este óxido possui importantes propriedades como alta constante dielétrica, alta capacidade de condutividade iônica do oxigênio, alta absorção de radiação ultravioleta, além de ser de fácil crescimento epitaxial sobre Si. O CeO₂ é um material paramagnético. (SKORODUMOVA *et al.*, 2001) (LIU; HON; TEOH, 2013) (ZHANG *et al.*, 2014)

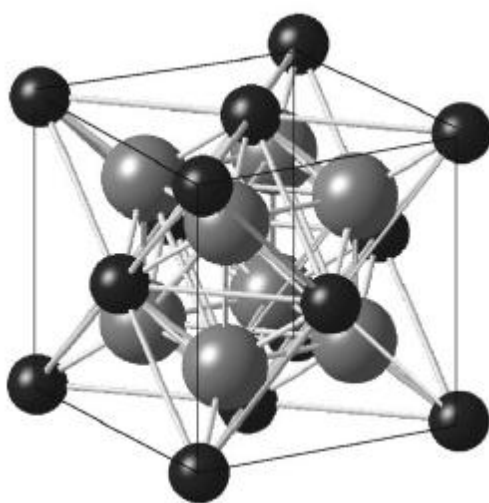


Figura 2.8: Estrutura cúbica tipo fluorita do CeO₂, onde as esferas pretas e cinzas representam o átomo de cério e de oxigênio, respectivamente. (SKORODUMOVA *et al.*, 2001)

Além de todas as propriedades citadas acima, o filme fino deste material tem a capacidade de atuar como camada *buffer* para crescimento de outros filmes, prevenindo a interdifusão entre materiais que podem ser altamente reativos. (NIE;YAMASAKI;MAWATARI, 2004) (DEBNATH;ISLAM;KHAN, 2007) (PARK *et al.*, 1997)

O óxido de cério possui parâmetro de rede $a_0 = 5,411\text{Å}$, o que é mais próximo do parâmetro de rede do LCMO ($a_{0\text{LCMO}} = 5,468\text{Å}$) do que o do YBCO ($a_{0\text{YBCO}} = 3,82\text{Å}$). Esta diferença não impede que haja o crescimento epitaxial do YBCO, pois, a diagonal da cela unitária do YBCO, é aproximadamente o valor do parâmetro de rede do CeO₂, como mostra a Figura 1.9(a). CHEN *et al.* (2011), sugeriu o esquema da Figura 1.9(b) para descrever o crescimento epitaxial de filmes de LSMO (La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃) utilizando substratos STO com adição de CeO₂, em seus nanocompósitos de alinhamento vertical, VAN (Vertically Aligned Nanocomposite).

Os parâmetros de rede do LSMO são próximos aos do YBCO, o que permite a utilização do mesmo esquema.

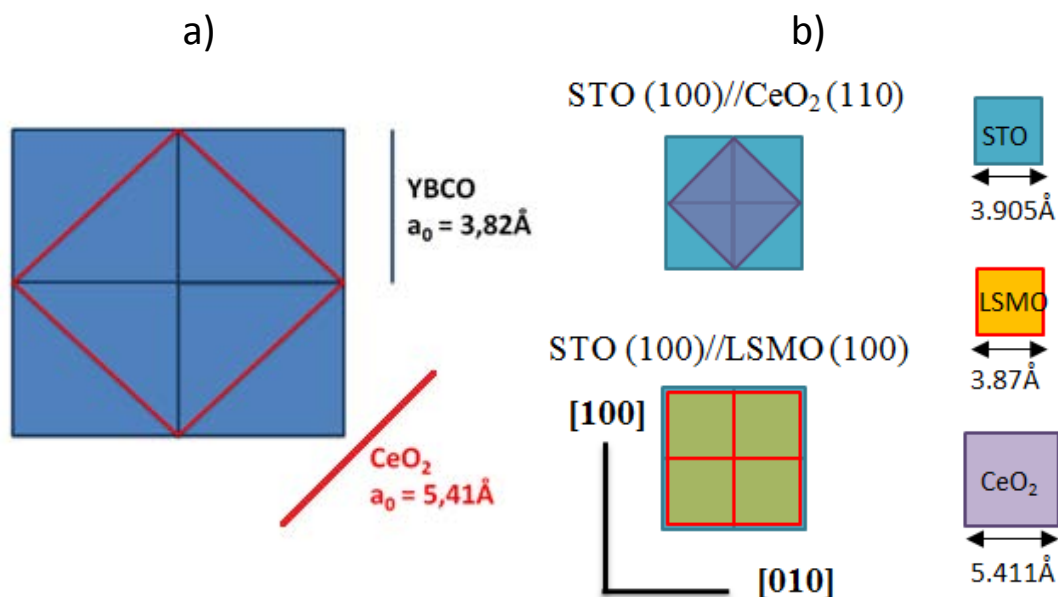


Figura 2.9: Ilustração esquemática da compatibilidade dos parâmetros de rede do (a) STO, LSMO e CeO₂, e (b) YBCO e CeO₂. Ambas paralelas ao substrato. (Adaptada CHEN *et al.*, 2011)

2.7 Super-Redes

As propriedades físicas de materiais podem ser modificadas criando uma periodicidade estrutural adicional pela deposição alternada de finas camadas de diferentes materiais. No caso de difração de raios X, alega-se que as propriedades indicadas para aquele comprimento da onda que penetra a super-rede podem ser influenciadas pela periodicidade das multicamadas. (FEWSTER, 1996)

Segundo a IUPAC, super-redes são multicamadas periódicas, sintéticas cujas celas unitárias consistem de sucessivas camadas quimicamente diferentes de suas vizinhas. De um modo mais simples, EL TAHAN (2010), define super-redes como estruturas coerentes de camadas alternadas de dois ou mais materiais.

A principal diferença entre super-redes e multicamadas é a periodicidade das monocamadas. Como exemplo, a periodicidade da super-redes pode ser resultante de combinações do tipo (n,m) , $(n+1, m-1)$, $(n-1, m+1)$, $(n-2, m+1)$, etc. onde n e m

são números de monocamadas de cada tipo de material da super-redes. (FEWSTER, 1993)

As super-redes do sistema supercondutor e ferromagnético (YBCO/LCMO) tem sido objeto de estudo há alguns anos. Estruturalmente sua estrutura de rede e compatibilidade química favorece a combinação permitindo a deposição de heteroestruturas de filmes finos de alta qualidade (MALIK *et al.*, 2012). O entendimento das interações entre estes dois materiais antagônicos ainda necessitam de explicações, pois, de acordo com CHIEN *et al.* (2013), a interação entre os pares de Cooper de spins singleto pareados e o campo originado pelo ordenamento no material ferromagnético submetido a campo magnético aplicado não se encontra esclarecido. Sem dúvida, este é um dos maiores desafios da física do estado sólido atual (HOPPLER *et al.*, 2012) que em vista do esclarecimento poderá promover grandes avanços tecnológicos com possíveis aplicações dos fenômenos nelas observados. Por exemplo o efeito de proximidade entre as camadas de supercondutor e metal pode gerar aplicações na eletrônica supercondutora (ZHANG *et al.*, 2009), microeletrônica e spintrônica. (BLAGOEV *et al.*, 2013)

2.8 ESTADO DA ARTE – Heteroestruturas YBCO/LCMO

Segundo Hoppler (2009), os estudos em heteroestruturas de YBCO/LCMO começaram a ser reportados no final dos anos 90. A motivação para unir estes dois materiais antagônicos surgiu do fato do LCMO ser um meio-metal com banda de condução totalmente spin polarizada e potencialmente adequado para injeções de spin em diferentes materiais. O YBCO é um supercondutor com parâmetro de ordem complexo (*d-wave*), e alta temperatura de transição (T_C). O aprimoramento das técnicas de deposição tornou possível o crescimento do YBCO e LCMO de forma epitaxial, fazendo com que estes, e outros materiais, pudessem ter suas características amplamente estudadas, com a possibilidade de aplicação em dispositivos spintrônicos. (OPEL, 2012)

Numerosos estudos estão sendo realizados com YBCO e LCMO em diferentes formas de heteroestruturas, são elas: *bi-layer*, *tri-layer*, multi camadas e super-redes. Na sequência, serão expostos apenas alguns trabalhos que foram realizados com diversos tipos de heteroestruturas.

SOLTAN (2005) faz análise estrutural e magnética das heteroestruturas do tipo FM/SC, em forma de *bi-layer*. O SC utilizado é o $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO), e os FM são $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (LCMO), SrRuO_3 (SRO) e LaNiO_3 (LNO). A deposição é feita em três tipos de substratos: SrTiO_3 (STO), LaSrGaO_4 (LSGO) e LaSrAlO_4 (LSAO). Apesar das estruturas serem diferentes, elas possuem parâmetros de rede muito próximos, o que possibilita a deposição do filme fino. A razão calculada para a diferença $a \times b$ (parâmetros de rede) do filme de YBCO e de um substrato de LCMO é de aproximadamente 0,4%. O que está relacionado com a tensão existente na interface destas camadas. Quando há tensão de tração na deposição, ocorre redução do parâmetro de rede c da camada YBCO depositada, enquanto que a tensão de compressão é indicada pelo aumento deste parâmetro.

A Figura 2.10 mostra resultados de difração de raios X obtidos para *bi-layers* LCMO/YBCO. Os difratogramas mostram uma única fase, tanto para o supercondutor como para o ferromagneto. São observados apenas os picos (00ℓ) , para ambas camadas YBCO e LCMO, mostrando a orientação do eixo c como preferencial. Estes difratogramas mostram a alta qualidade da deposição, e consequentemente, do filme.

Quanto mais espessa é a camada do YBCO, mais o parâmetro de rede c se aproxima do valor encontrado para uma amostra volumétrica (*bulk*).

Foi feito também o estudo da *rocking curve* em alguns picos de Bragg, dando informação sobre a dispersão da orientação cristalina. Quanto mais largo for o pico, maior a diversidade de orientações das estruturas cristalinas ao redor daquele plano. No caso destas *bi-layers*, não foi possível obter informações dos eixos a e b , em função do crescimento epitaxial preferencial do eixo c .

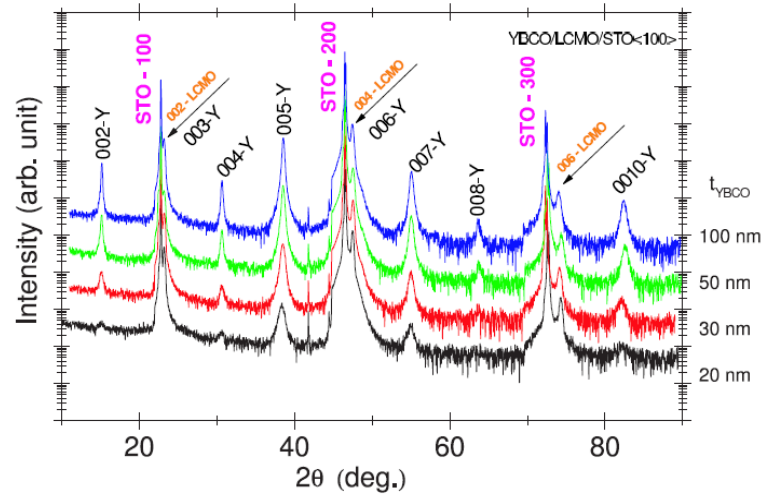


Figura 2.10: Difratoformas de raios X das bi-layers YBCO/LCMO depositadas sobre substrato STO(100). A espessura do YBCO varia de 20nm a 100nm enquanto que a espessura do LCMO é mantida a 50nm. (SOLTAN, 2005)

A Figura 2.11 mostra a micrografia de transmissão eletrônica (MET) da super-rede $(\text{YBCO}_{8\text{nm}}/\text{LCMO}_{4\text{nm}})_{\times 20}$. O trabalho de SOLTAN (2005) é o estudo de *bi-layers*, porém, para que fosse possível observar o crescimento, camada a camada, foi utilizada uma amostra em forma de super-rede. A parte inferior, escura e cúbica, representa a fase cristalina do substrato STO. A primeira camada depositada foi a de YBCO, a qualidade desta deposição costuma ser controlada pela qualidade da superfície do substrato. O YBCO é representado pela camada mais clara, em contato com o substrato, e é possível ver que o crescimento ocorreu de forma contínua na direção do eixo *c*. Na sequência foi depositado o LCMO, que aparece como a segunda área mais escura. Esta super-rede apresenta um crescimento cubo sobre cubo, e a interdifusão de uma camada em relação à outra é de no máximo 2 celas unitárias.

No trabalho citado foi feito também microscopia de força atômica (AFM) com o objetivo de comparar o mecanismo de crescimento da *bi-layer* $(\text{YBCO}_{100\text{nm}}/\text{LCMO}_{50\text{nm}})$ com o crescimento do filme de cada um dos materiais, YBCO e LCMO. A Figura 2.12 refere-se à superfície do YBCO crescido sobre o substrato de STO, que apesar de homogênea e plana apresenta uma distribuição de picos que é característica do método Stranski-Krastanov, no qual o crescimento do filme é feito camada a camada nas sequências iniciais, porém, devido à relaxação

de um campo de tração intrínseco surge o crescimento colunar e/ou em forma de ilha, típico de filmes de YBCO.

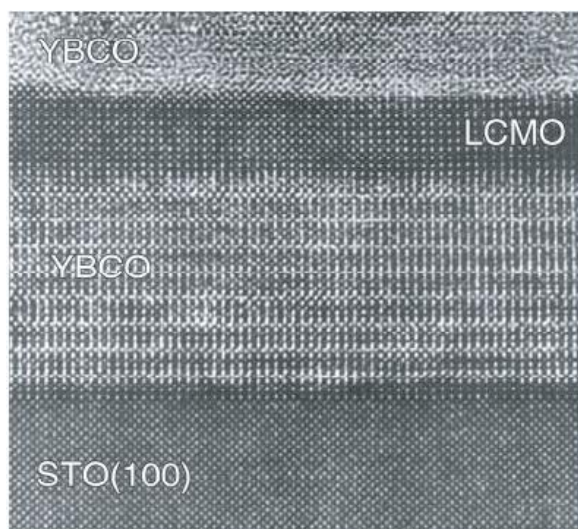


Figura 2.11: Super-rede de $(\text{YBCO}_{8\text{nm}}/\text{LCMO}_{4\text{nm}})_{\times 20}$ observada ao MET. (SOLTAN, 2005)

A Figura 2.12(b) mostra a superfície do filme de LCMO sobre o substrato de STO. O parâmetro de rede destes dois materiais são muito próximos, assim a média de rugosidade da superfície é consideravelmente menor comparado ao YBCO.

A superfície da *bi-layer* ($\text{YBCO}_{100\text{nm}}/\text{LCMO}_{50\text{nm}}$) é mostrada na Figura 2.12(c), onde se observa uma topografia completamente diferente daquelas nos filmes de LCMO e de YBCO. A superfície consiste basicamente de dois tipos de estruturas: ilhas arredondadas de cerca de 1-2 μm de diâmetro e, plataformas mais altas que são orientadas apenas em duas direções perpendiculares, e que apresentam largura de aproximadamente 100nm e comprimento de diversos μm . Estas imagens indicaram que não há crescimento camada a camada nestas *bi-layers* e nenhum modelo foi encontrado para justificar os resultados.

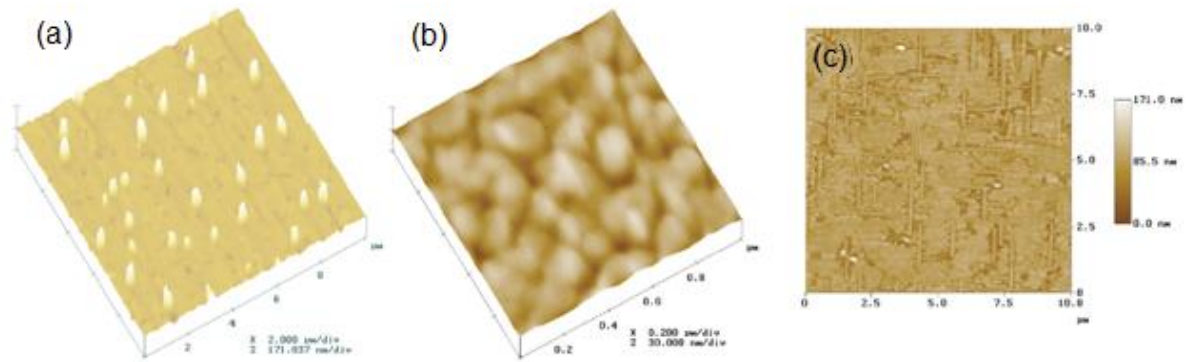


Figura 2.12: imagens de AFM da superfície do (a) YBCO sob varredura de $10 \times 10 \mu\text{m}$, (b) LCMO sob varredura de $1 \times 1 \mu\text{m}$ e (c) *bi-layer* (YBCO_{100nm}/LCMO_{50nm}) sob varredura de $10 \times 10 \mu\text{m}$. (SOLTAN, 2005)

A Figura 2.13 mostra a medida de magnetização em função da temperatura ainda para a *bi-layer* de SOLTAN (2005). Nos gráficos são apresentadas as curvas ZFC e FC, sob campo magnético externo de 10 Oe aplicado paralelamente ao filme. Ambas as curvas apresentam temperatura de transição ferromagnética, T_{Curie} , em aproximadamente 135K. A curva ZFC mostra, adicionalmente, o comportamento diamagnético que é típico de supercondutores, com $T_c \approx 87\text{K}$.

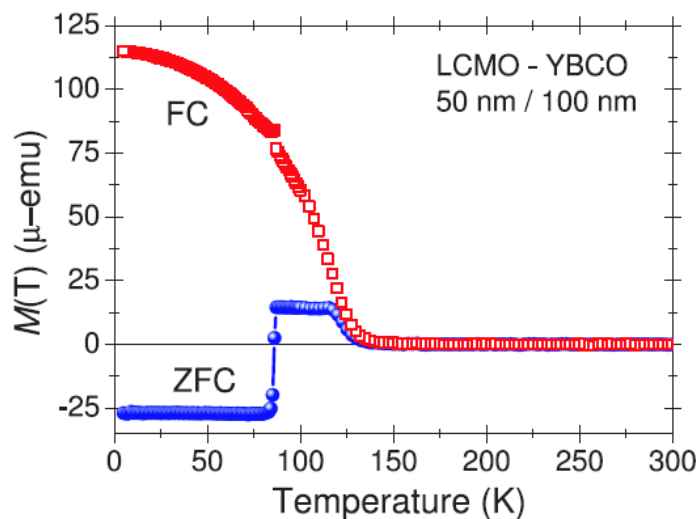


Figura 2.13: Gráfico de magnetização em função da temperatura determinado para a *bi-layer*, (círculos) curva ZFC e (quadrados) curva FC. O campo aplicado foi de 10 Oe paralelo à superfície do filme. (SOLTAN, 2005)

Na Figura 2.14(a) são mostradas curvas de magnetização ZFC em função da temperatura em *bi-layers* com espessura de LCMO igual a 50nm, e com diferentes espessuras de YBCO, $t_{YBCO} = 20, 30$ e 100nm. As amostras com $t_{YBCO} = 30$ nm e 100nm apresentaram a transição supercondutora, sendo que a temperatura crítica foi bastante reduzida para a camada mais fina, mas o comportamento supercondutor predominou. Este tipo de dependência da temperatura crítica sobre a espessura da camada de YBCO apenas é encontrado nos filmes deste supercondutor quando a camada é bem menor que 10nm. (TANG *et al.* 2000) (TRISCONE *et al.* 1990)

As curvas FC, na Figura 2.14(b), comprovam que mesmo abaixo da transição supercondutora (T_c), o ordenamento ferromagnético está presente, ou seja, para todas as temperaturas abaixo de T_{Curie} . Observa-se também que a T_{Curie} se desloca para temperaturas menores com o aumento da espessura do YBCO. No caso das *bi-layers* com 20nm e 30nm de espessura de YBCO, $T_{Curie} \approx 229$ K, enquanto que a *bi-layer* com 100nm de YBCO, a T_{Curie} deslocou para ≈ 180 K.

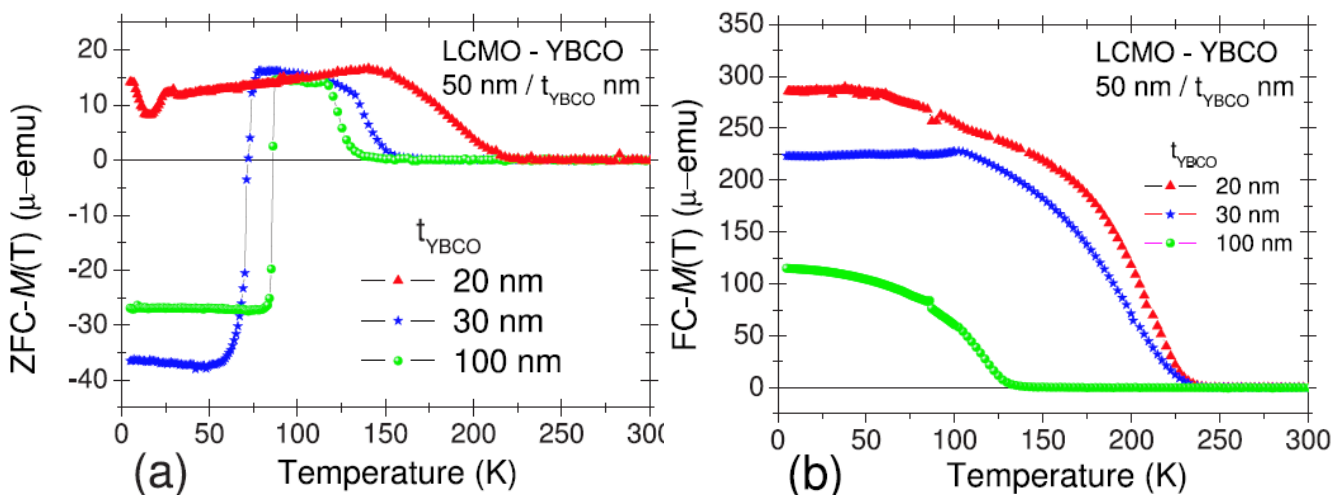


Figura 2.14: Curvas de magnetização em função da temperatura (a) ZFC e (b) FC, com campo magnético aplicado de 10 Oe paralelo à superfície do filme. As medidas são referentes à *bi-layers* com 50 nm de LCMO e 20nm, 30nm e 100nm de YBCO, como indicado na figura. (SOLTAN, 2005)

Por meio de medidas elétricas realizadas no mesmo conjunto de *bi-layers* foi possível observar que a camada de LCMO interfere fortemente nas propriedades

supercondutoras do YBCO. Como ilustra a Figura 2.15, diferentemente das *bi-layers* com 30nm e 100nm de YBCO, a *bi-layer* com 20nm quando resfriada apresenta inicialmente um comportamento semelhante a de um semiconductor que, em aproximadamente 180K, transita para o comportamento metálico. Por outro lado, para as amostras com t_{YBCO} de 30 e 100nm observou-se o comportamento normal do YBCO. Segundo o autor, isto indica que a corrente deve, nestes últimos casos, estar fluindo apenas pelo supercondutor. Isto se justifica pela verificação da diferença muito grande entre a resistividade elétrica dos dois materiais em temperatura ambiente: $\rho_{\text{YBCO}}(300\text{K}) \sim 150\mu\Omega.\text{cm}$ e $\rho_{\text{LCMO}}(300\text{K}) \sim 10\text{m}\Omega.\text{cm}$. O comportamento da *bi-layer* com $t_{\text{YBCO}} = 20\text{nm}$ foi interpretada como resultante da difusão das quase-partículas spin polarizadas do LCMO para o interior do YBCO.

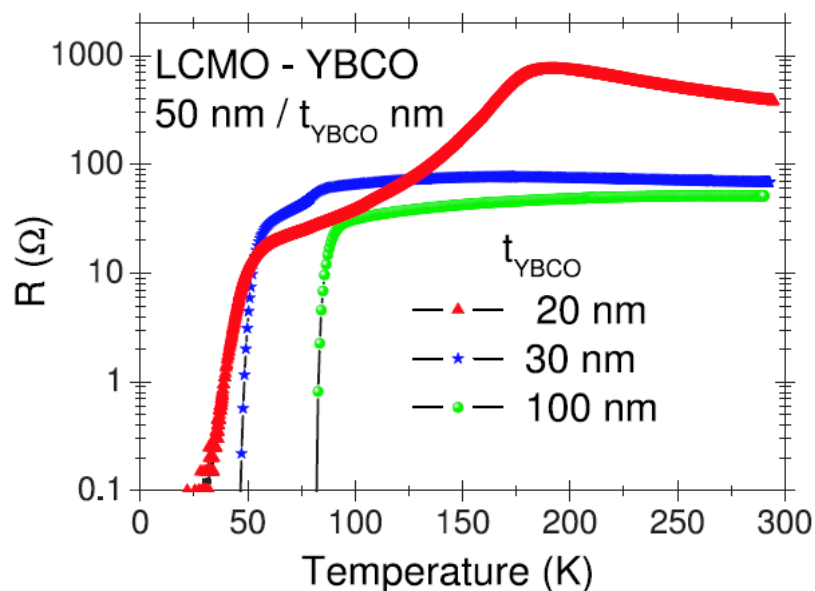


Figura 2.15: Resistência em função da temperatura de *bi-layers* com espessuras indicadas na figura. (SOLTAN, 2005)

Para justificar a redução observada na temperatura de transição supercondutora das *bi-layers*, SOLTAN (2005) aplicou um modelo teórico que permitiu estimar o comprimento de difusão de spin das quase-partículas spin polarizadas do ferromagneto para o supercondutor.

Inicialmente considerou-se um material supercondutor e um metal normal, com uma interface ideal, livre de defeitos estruturais, formando uma *bi-layer*. O

fenômeno apresentado nesta interface é o *Efeito de Proximidade*, que é a existência de pares de Cooper na região do metal normal, extrapolando a região supercondutora, como mostra a Figura 2.16.

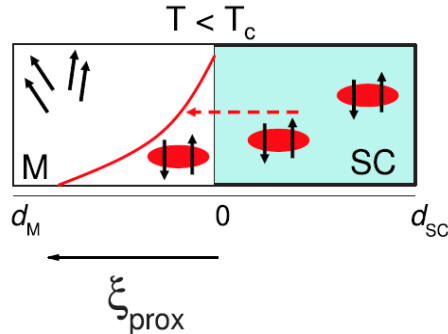


Figura 2.16: Ilustração esquemática do efeito de proximidade em uma interface entre um metal normal (M) e um supercondutor (SC), quando $T < T_c$. ξ_{prox} é o comprimento de proximidade da teoria de Ginzburg-Landau. (SOLTAN, 2005)

Nesta interface, a supercondutividade penetra o metal normal à uma espessura ξ_{prox} , denominada de comprimento de proximidade. Segundo SOLTAN (2005), pode-se descrever este efeito como uma condição de contorno da teoria de Ginzburg-Landau generalizando como:

$$\left(-i\hbar\vec{\nabla} - \frac{e^*}{c}\vec{A} \right) \psi = -\frac{i\hbar}{\xi_{prox}} \psi \quad (2.1)$$

Onde, ξ_{prox} é uma generalização do comprimento de extrapolação de De Gennes, que descreve o decaimento da densidade de pares de Cooper dentro do metal normal. A teoria microscópica dada à uma interface supercondutora/isolante é:

$$\xi_{prox} = \frac{\xi_0}{a_0} \quad (2.2)$$

Onde, ξ_0 é o comprimento de coerência da Teoria de London e a_0 é a distância interatômica.

Em uma interface metal normal/supercondutor é preciso considerar que o limite pode ser interpretado de duas maneiras, o limpo ou o sujo. Fisicamente, isto

pode ser representado relacionando o comprimento de coerência ξ_0 e o livre caminho médio ℓ , assim quando:

$\xi_0 \ll \ell$ – O limite limpo, tem-se:

$$\xi_{prox} = \frac{\hbar v_F}{k_B T} \quad (2.3)$$

$\xi_0 \gg \ell$ – O limite sujo, tem-se:

$$\xi_{prox} = \sqrt{\frac{\hbar \ell v_F}{6\pi k_B T}} \quad (2.4)$$

Onde, v_F é a velocidade de Fermi, k_B é a constante de Boltzmann.

Em supercondutores convencionais, a distância interatômica (a_0) é maior que ξ_0 , assim a supercondutividade é mais eficiente, isto é, o efeito supercondutor permanece até o extremo H_{C2} .

Ainda segundo SOLTAN (2005), no caso de supercondutores em contato com isolante, o ξ_{prox} é muito pequeno, e conseqüentemente não interfere na supercondutividade. No entanto, quando o comprimento de coerência é da ordem da distância interatômica, $\xi_0 \approx a_0$, é possível observar importantes efeitos, como os que se sucederão neste trabalho.

Considerando uma interface entre um material supercondutor e um ferromagnético, é possível supor um caso ideal, como na Figura 2.17.

Na Figura 2.17 é possível observar que as características magnéticas de cada material são bem distintas. O supercondutor tem seus portadores de carga com spin e momento opostos, os pares de Cooper, enquanto que o ferromagneto possui seus momentos magnéticos paralelamente alinhados.

Existem alguns sistemas em que o ferromagnetismo é encontrado de forma natural, pelo fato de alguma região possuir seus spins alinhados, e também alguns sistemas onde o ferromagnetismo e a supercondutividade não se sobrepõem em

algumas regiões de um material mesoscópico (GINZBURG, 1987 apud SOLTAN, 2005).

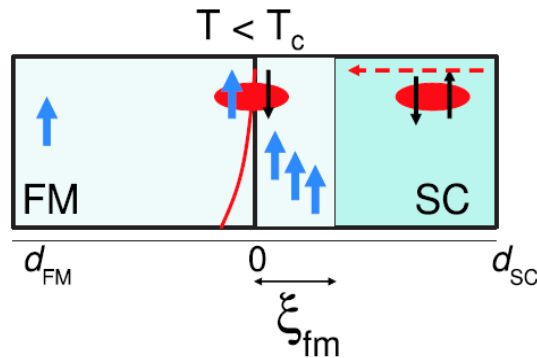


Figura 2.17: Ilustração esquemática da interface entre um supercondutor e um ferromagneto, quando $T < T_c$. A quasipartícula spin-polarizada não apenas reprime os pares de Cooper ao penetrar o ferromagneto, mas também difunde no lado supercondutor com comprimento de difusão ξ_{fm} . (SOLTAN, 2005)

Segundo SOLTAN (2005) o efeito de proximidade em uma interface supercondutor/ferromagneto é drasticamente reduzida, devido à ação destrutiva da energia de troca (*exchange energy*) J_{spin} , exercida sobre os pares de Cooper. Neste caso, os pares de Cooper penetram a região ferromagnética até uma distância de:

$$\xi_{prox} = \frac{\hbar v_F}{\Delta J_{spin}} \quad (2.5)$$

Considerando que cada elétron do par de Cooper esteja em diferentes bandas de spin, estas bandas são deslocadas pela J_{spin} . Caso J_{spin} seja suficientemente grande, o par de Cooper se quebra, isto porque $\xi_{prox} \propto \frac{1}{\Delta J_{spin}}$. A energia de troca J_{spin} do LCMO, um material com o efeito de magnetoresistência colossal (CMR), é considerada alta, com valor de aproximadamente 3eV (QUIJADA *et al.* 1998). Por esta razão, a temperatura crítica supercondutora de super-redes do tipo *d-wave* HTSC/CMR apresenta oscilação em função da espessura dos materiais utilizados.

Já em *bi-layers* do tipo ferromagneto e supercondutor do tipo I, há oscilação da temperatura crítica, e este comportamento é atribuído teoricamente e experimentalmente, pelo tunelamento dos pares de Cooper no interior do material ferromagnético, através de sua interface. Segundo IZYUMOV; PROSHIN; KHUSAINOV (2002) para o caso de supercondutores puro, a condição de contorno considerada é para o caso de um limite limpo.

Outro efeito que pode ocorrer nesta interface é o denominado de quasipartícula spin-polarizada (SPQ – Spin-Polarized Particle), também conhecido como efeito de proximidade inverso. Consiste em se utilizar a J_{spin} como força motriz para os pares de Cooper compartilhar os elétrons na interface FM/SC, como mostra a Figura 2.17. Na região ferromagnética, os spins dos momentos magnéticos preferem se alinhar paralelamente uns com os outros, enquanto que na parte SC eles se alinham antiparalelos.

Como inicialmente é considerado que o comprimento de decaimento do parâmetro de ordem do supercondutor, ξ_{prox} , na camada ferromagnética (efeito de proximidade), pode ser descrito pela equação 2.5

E que o comprimento de coerência do supercondutor, ξ_{SC} , é dado por:

$$\xi_{SC} = \sqrt{\frac{\hbar D_{SC}}{kBT_c}} \quad (2.6)$$

Onde, D_{SC} é o coeficiente de difusão de elétrons no supercondutor, k é a constante de Boltzmann e T_c é a temperatura crítica.

Porém o emprego destas expressões não justificariam as oscilações da temperatura crítica visto que a energia de troca ΔJ_{spin} é muito alta ($\sim 3\text{eV}$) e o comprimento de coerência no YBCO é muito pequeno, $\xi_{ab} \sim 1,6\text{nm}$ e $\xi_c \sim 0,3\text{nm}$. Conseqüentemente, o *efeito de proximidade* e até a possibilidade de *reflexões de Andreev* são descartados. Entretanto, oscilações de T_c podem ser justificadas para o caso de injeção de quase-partículas spin polarizadas com energia adicional. A quebra de pares em sistemas como o FM/SC devido a injeção de quase-partículas foi considerada também em outros trabalhos (GRAY, 1981) (PARKER, 1975) (YEH *et al.*, 1999), onde a energia necessária para suprimir o parâmetro de ordem

supercondutor, $\Delta(\eta_{qp})$, devido à densidade de quase-partículas spin polarizadas, η_{qp} , é dada por

$$\frac{\Delta(n_{qp})}{\Delta(0)} \approx 1 - \frac{2n_{qp}}{4N(0)\Delta(0)} \quad (2.7)$$

Onde, $N(0)$ e $\Delta(0)$ fornecem a densidade de estados e o parâmetro de ordem em $T = 0K$, respectivamente. De acordo com o autor, η_{qp} é gerado por auto-injeção ao longo da direção c através da interface altamente transparente (ordenada e limpa) e é governado pela alta energia de troca do spin, $\Delta J_{spin} \sim 3eV$, da camada magnética. A injeção de quasipartículas (*QPI – Quasiparticle Injection*) é uma função dependente da temperatura e pode ser derivada na seguinte forma (GIM;KLEINSASSER;BARNER, 2001) (YEH *et al.*, 1999):

$$n_{qp}(T) \approx 4N(0)\Delta(0) \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{\Delta(T)k_B T}{\Delta^2(0)} e^{-\frac{\Delta(T)}{k_B T}} \quad (2.8)$$

A partir deste ponto o comprimento de difusão de spin do ferromagneto, ξ_{FM} , foi definido como em casos clássicos de interface:

$$\xi_{FM} \approx \sqrt{\ell_0 v_F \tau_S} \quad (2.9)$$

Onde, o livre caminho médio do YBCO, ℓ_0 , ($T = 0K$) é aproximadamente 20nm e o τ_S é o tempo de relaxação da difusão de spin, dado por:

$$\tau_S \approx 3,7 \frac{\hbar k_B T_C}{\Delta J_{spin} \Delta(T)} \quad (2.10)$$

onde:

$$\Delta(T) \approx \Delta(0) \sqrt{1 - \left(\frac{T}{T_C}\right)} \quad (2.11)$$

Com $\Delta(0) \approx 20meV$ para o caso do YBCO. Desta forma, a dependência da temperatura e o comprimento ξ_{FM} acaba sendo introduzido na equação (2.3).

Considerando a densidade de spins no supercondutor, e supondo que a densidade crítica de spins é alcançada em uma distância $d = \alpha \xi_{FM}$ onde α é 3, pode-se escrever

$$d = \alpha \xi_{fm} \cong 3.7 \frac{\alpha m^* \hbar v_F^2}{\Delta(0) \Delta J_{spin} n_{qp}(0) e^2} \frac{\sqrt{T/n_{qp}(T)}}{\sqrt[4]{1-(T/T_c)}} \quad (2.12)$$

Onde, m^* e e são a massa e a carga efetiva do elétron. A distância d passa a ser identificada com a espessura da camada do supercondutor para efeito de análise.

Introduzindo a equação (2.4) foi possível ajustar os dados experimentais das *bi-layers* usando a densidade das quase-partículas como único parâmetro livre. Para os casos estudados foram encontrados decréscimos de *gap* de energia $\eta_{qp}(T) \approx 0,36, 0,35$ e $0,13$ para as razões $T/T_c = 0,01, 0,3$ e $0,9$, respectivamente. Os quais se encontram em concordância com valores determinados teoricamente em artigos anteriores (NICOL; CARBOTTE, 2003) (KOLLER *et al.*, 1998).

A descrição correspondeu perfeitamente aos resultados experimentais da Figura 2.15, e indicaram que a recuperação da temperatura de transição da camada de YBCO ocorre quando esta era cerca de 30 nm, o que leva a um comprimento de difusão de spin, ξ_{FM} , de 10nm.

Este valor está em acordo com resultados anteriores onde este foi estimado por meio de experimentos ópticos em super-redes de LCMO/YBCO (HOLDEN *et al.*, 2004) (CHEN *et al.*, 2004). Estes resultados fornecem evidência de que a resposta do portador livre é fortemente suprimida nas super-redes em comparação com camadas individuais de YBCO e LCMO. Nota-se ainda, que no caso das super-redes as quase-partículas spin polarizadas penetram de ambos os lados da camada supercondutora. (SOLTAN, 2005) (CHEN *et al.*, 2004)

HOLDEN *et al.* (2004) investigaram as propriedades dielétricas das super-redes de YBCO/LCMO no infravermelho próximo, e também observou uma espessura crítica de camada abaixo da qual os parâmetros de ordem são quase totalmente suprimidos. Para o YBCO foi encontrado a espessura crítica de 20nm e para o LCMO foi de 10nm.

A densidade de corrente crítica (J_c) da *bi-layer* estudada por SOLTAN (2005) foi extraída a partir de imagens de magnetização óptica (*Magneto-Optical Imaging – MOI*), para a qual o valor padrão de J_c a 5K de um filme de YBCO de boa qualidade é 3×10^{11} A/m². No caso das *bi-layers* a J_c é ampliada devido ao estado magnético da camada de LCMO. Além disto, é possível que ocorra aprisionamento das linhas de fluxo nas proximidades do contorno do domínio magnético.

A Figura 2.18 mostra que a J_c está associada à espessura do YBCO. A J_c tem valor aproximado de 6×10^{11} A/m², a 7K. A influência ferromagnética diminuiu com o aumento da espessura do YBCO e isto está relacionado ao fato da interface FM/SC interagir como domínio estrutural magnético causando forças de aprisionamento adicionais nas linhas de fluxo supercondutoras, aumentando a corrente crítica. A fim de estudar o desacoplamento entre as camadas FM e SC, foi inserida uma camada de 5nm de STO entre elas.

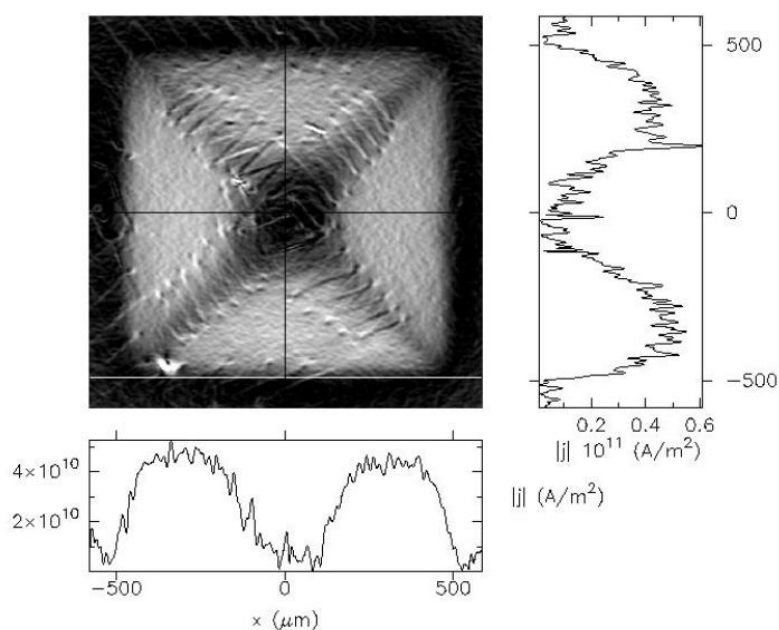


Figura 2.18: Magnitude da densidade de corrente crítica na *bi-layer* (YBCO_{50nm}/LCMO_{50nm}) a $T = 7K$, onde um campo magnético externo de 3mT em uma curva ZFC. A escala cinza refere-se linearmente à valores de $J_c = 5 \times 10^{10}$ A/m² (preto) e $J_c = 6 \times 10^{11}$ A/m² (branco). (SOLTAN, 2005)

A Figura 2.19 mostra as medidas de magnetização em função da temperatura realizadas com a heteroestrutura (LCMO_{50nm}/STO_{5nm}/YBCO_{100nm}) que foi depositada em substrato de STO. Claramente a amostra sofre ordenamento ferromagnético

próximo de $T_{\text{Curie}} = 245\text{K}$ e transita para o estado supercondutor em $T_c = 87\text{K}$. Logo, abaixo de 87K existe tanto o ordenamento magnético como a supercondutividade na amostra testada. No estudo de uma estrutura similar, porém sem a camada STO entre o LCMO e o YBCO, e com a camada de YBCO reduzida para 50nm , a T_{Curie} é aproximadamente 135K , enquanto a T_c permaneceu em torno de 87K . Estes resultados evidenciam que a camada STO entre o supercondutor e o ferromagneto pode bloquear a interação eletrônica entre as camadas.

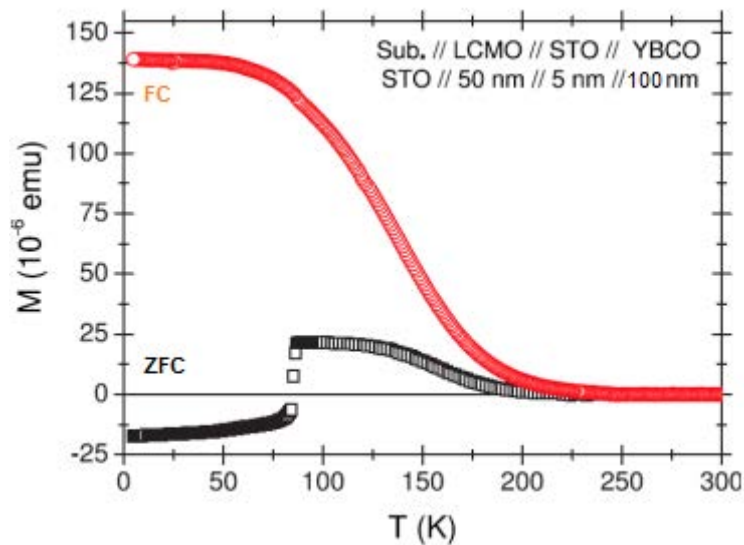


Figura 2.19: Magnetização em função da temperatura da heteroestrutura ($\text{LCMO}_{50\text{nm}}/\text{STO}_{5\text{nm}}/\text{YBCO}_{100\text{nm}}$) depositada sobre substrato de STO. A curva inferior é referente a ZFC (quadrados) e a superior à FC (círculos), sob aplicação de um campo magnético de 10 Oe paralelo à superfície da amostra. (SOLTAN, 2005)

Com esta mesma amostra, foram realizadas curvas de histerese à 5K e a 70K (Figura 2.20), e ambas, apresentam comportamento típico de supercondutor. Porém, o valor de magnetização à 5K é aproximadamente 100 vezes maior que a medida realizada a 70K . A assimetria com relação aos eixos encontrada em ambos os gráficos é comentada pelo autor como sendo resultante da dependência da magnetização sobre o sentido no qual o campo é varrido.

Os valores de densidade de corrente crítica obtidos pelo modelo de Bean são baseados no módulo da diferença da magnetização nos dois ramos da curva de

histerese. Estes são altos neste experimento, e foi suposto haver uma forte contribuição da magnetização da camada ferromagnética. De acordo com o autor existe ainda uma grande contribuição do aprisionamento das linhas de fluxo magnético devido a própria heteroestrutura, e depende da espessura da camada de YBCO.

Além disso, foi sugerido que a formação dos domínios magnéticos no LCMO é fortemente afetada pela rede de linhas de fluxo no supercondutor, principalmente em temperaturas entre 50K e a T_c .

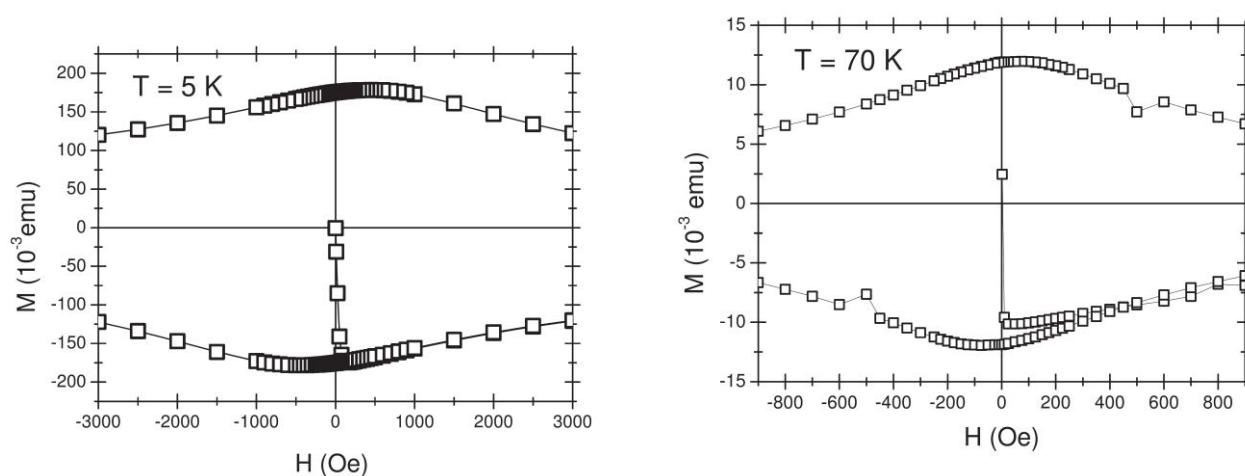


Figura 2.20: Curva de histerese da amostra de bi-layer feito a 5K e a 70K.

IZYUMOV; PROSHIN; KHUSAINOV (2002) fazem uma revisão dos problemas da coexistência entre um supercondutor, que expulsa o campo magnético do seu interior (efeito Meissner), e um ferromagneto, que concentra as linhas de campo em seu interior (efeito de indução magnética). Apesar dos parâmetros de ordem serem tão distintos, teoricamente seria possível preparar sistemas do tipo ferromagneto/supercondutor (FM/SC) com facilidade. O parâmetro de ordem SC pode ser influenciado pela camada FM, denominado efeito de proximidade. Um par de FM também podem interagir através de uma camada SC entre eles. Este sistema exhibe riqueza de propriedades físicas que podem ser sintonizadas (tuning) pelo controle da espessura das camadas ou pela aplicação de campo magnético.

Novas tecnologias vêm possibilitando a deposição de materiais de camada a camada, permitindo o estudo em função da espessura de cada uma delas. Estudos do sistema FM/SC, junções e super-redes, revelam que a dependência da temperatura de transição supercondutora (T_c) sobre a espessura de FM não é trivial. Elementos lógicos de chave tipo spin (*spin switches*) foram sugeridos com base na relação entre os parâmetros de ordem supercondutor e magnético, em estruturas FM/SC/FM (3 camadas) e SC/FM/SC/FM (4 camadas). Veja Figura. 2.21.

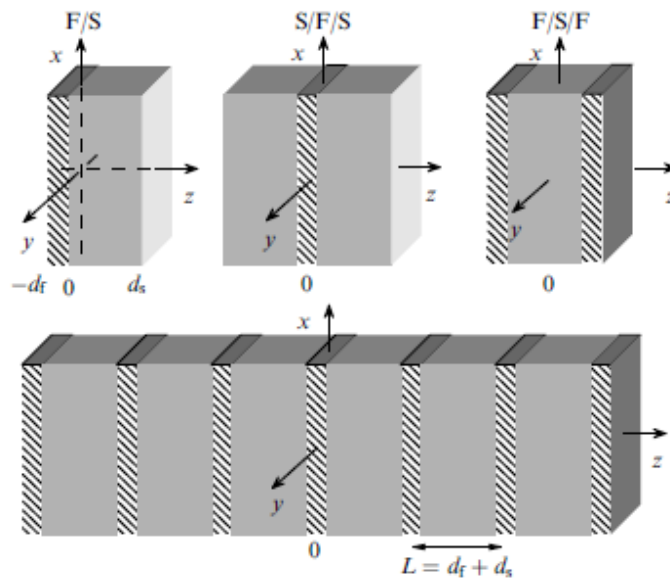


Figura 2.21: Sistemas multicamadas FM/SC: *bi-layer* (FM/SC), *tri-layer* (SC/FM/SC) e (FM/SC/FM), e super-redes SC/FM, com espessura d_F de FM, e espessura d_S de SC. (IZYUMOV;PROSHIN;KHUSAINOV, 2002)

Um dispositivo feito com arquitetura de camadas alternadas de supercondutor e ferromagneto é colocado como um sistema que pode ter suas camadas enfraquecidas mutuamente. Ou seja, cada sub-sistema, SC ou FM, pode criar modulação não uniforme do parâmetro de ordem do outro.

O ferromagnetismo em um metal é suposto ser estabelecido pela interação de troca indireta RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida). Em uma fase normal, a susceptibilidade do spin dos elétrons condutores ($\chi_n(\vec{q})$) tem seu máximo quando $q = 0$, considerando q seu vetor de onda, o que favorece o estado supercondutor. Uma vez que a transição no estado supercondutor, $\chi_s(0)$ se torna zero a $T = 0$, uma

vez que todos os elétrons são acoplados em pares singlet. Foi verificado que quando $\vec{q} \neq 0$, a susceptibilidade supercondutora ($\chi_s(\vec{q})$) passa para seu máximo, cuja posição é determinada pelo vetor de onda da modulação estrutural magnética:

$$Q_0 \approx (a^2 \xi_{s0})^{-1/3} \quad (2.13)$$

Onde, ξ_{s0} é o comprimento de coerência de um supercondutor puro e a é o comprimento de correlação magnética que é da ordem da distância interatômica.

Segundo ANDERSON; SUHL (1959), este estado de coexistência é chamado criptoferromagnético, o resultado do ajuste mútuo de dois parâmetros de ordem que competem - neste caso seriam os pares de Cooper e o momento magnético, parâmetros da supercondutividade e do ferromagnetismo, respectivamente. A faixa que compreende esta modulação é: $a^{-1} \gg Q_0 \gg \xi_{s0}^{-1}$. A modulação estrutural magnética é uma das formas de coexistência da supercondutividade e do magnetismo.

O autor ainda cita o estado LOFF (Larkin-Ovchinnikov-Fulde-Ferrel), estado onde existe a supercondutividade ainda que o material seja submetido a campos magnéticos extremos, que aparece apenas em supercondutores do tipo I que atendem à teoria BCS. No estado LOFF os parâmetros de ordem espaciais do SC não são uniformes. O aparecimento deste estado não ocorre em amostras volumosas, entretanto a sua existência se estende a estruturas não uniformes, como junções FM/SC e super-redes FM/SC.

O efeito de proximidade é comumente mencionado como uma transferência parcial das propriedades supercondutoras em um metal normal (MN). A origem deste fenômeno encontra-se na larga extensão espacial da função de onda dos pares de Cooper que penetra o metal normal, em uma interface SC/MN, em distâncias comparáveis ao do comprimento de coerência.

Considerando um sistema de camadas supercondutoras intercaladas com um ferromagneto (FM/SC), é possível supor que quanto maior for a espessura da camada FM (d_{FM}), mais extenso será o efeito de supressão supercondutora. Porém, experimentalmente, observa-se a oscilação na dependência de T_c em relação a d_{FM} .

A teoria desenvolvida pelos pioneiros RADOVIC *et al.* (1991) e BUZDIN *et al.* (1992) levou a conclusão que a supercondutividade em sistemas FM/SC é uma combinação de pares BCS na camada supercondutora e de pares LOFF na camada ferromagnética. Se há alta transparência na junção, isto é, camadas com crescimento epitaxial sem defeitos, o estado oscila em função de d_{FM} , já se a transparência for moderada essa dependência pode sofrer suavização na forma.

Os parâmetros estudados em heteroestruturas de FM/SC são: comprimento de coerência ξ_{SC} , livre caminho médio ℓ_{SC} e espessura d_{SC} da camada supercondutora e, analogamente, comprimento de difusão ξ_{FM} , ℓ_{FM} e espessura d_{FM} do ferromagneto. Devido ao forte efeito de desparelhamento no campo de troca, a supercondutividade em sistemas não uniformes, como no caso de estruturas FM/SC, pode ser mantida se $d_{SC} \gg d_{FM}$. Por outro lado, o metal supercondutor é considerado estar no limite sujo quando:

$$\ell_{SC} < \xi_{SC} \quad (2.14)$$

O que corresponde às condições da montagem das junções e super-redes do tipo FM/SC. Isto facilita a descrição teórica do sistema permitindo o uso da equação de Usadel, ao invés de equações mais exatas como a de Gor'kov ou Eilenberger.

A equação de Usadel é válida para os casos de supercondutores BCS, incluindo o limite do movimento difusivo, efeito de interface e junções de tunelamento. A equação apresenta também soluções práticas para experimentos em escala microscópica (MARTINIS *et al.*, 2000). Usadel reduziu as equações de Eilenberger para o limite sujo, simplificando-as em funções complexas com poucas dependências (LIKHAREV, 1979). As equações de Gor'kov, também são usadas em supercondutores BCS, porém, sob condições não lineares, forte campo magnético aplicado e em temperaturas distantes de T_c . Sua resolução é dificultada por exigir métodos numéricos. As equações de Eilenberger são derivadas do método quasi-clássico da Função de Green, porém menos complicadas e especialmente aplicadas em ligas supercondutoras (BENNEMANN;KETTERSON, 2003).

Em relação às propriedades de transporte do sistema FM/SC, IZYUMOV;PROSHIN;KHUSAINOV (2002) cita o Efeito Josephson em duas

configurações diferentes de *tri-layers*, o FM/SC/FM e o SC/FM/SC. No caso SC/FM/SC, foi possível calcular a corrente através da junção em função da diferença de fase do parâmetro de ordem supercondutor ocorrida entre a sua primeira e a segunda camadas.

No caso FM/SC/FM, as propriedades de transporte são descritas pelos elétrons spin-polarizados e a reflexão Andreev. Os estudos são em função da aplicação de um potencial V em duas configurações diferentes: uma quando os momentos magnéticos das duas camadas FM possuem a mesma orientação; e outra quando elas possuem orientações diferentes, formando um lado antiferromagnético, AF.

A Figura 2.22 mostra o fenômeno que ocorre na junção quando a configuração é do tipo FM/SC/AF ($F\uparrow/SC/F\downarrow$). Quando os elétrons provenientes da camada FM estão atravessando a camada SC, seus spins têm orientação preferencial, e ao se deparar com uma camada AF, causa um desequilíbrio na polarização dos spins. Caso fosse uma configuração FM/SC/FM, não ocorreria desequilíbrio dos spins e tal polarização não ocorreria. Devido a polarização dos spins, o potencial químico (μ) das quasi-partículas do SC se desloca de um fator $\delta\mu$ com o spin *up* (\uparrow) e $-\delta\mu$ com o spin *down* (\downarrow). Assim, o efeito paramagnético surge, resultando em decréscimo da magnitude do *gap* supercondutor (Δ). A supressão da supercondutividade é devido ao acúmulo de polarização de spin na camada SC, até um certo valor crítico que corresponde à quebra dos pares de Cooper. Assim, para cada $T < T_c$, há um valor de potencial V_c (potencial crítico), onde o *gap* desaparece. (ZHENG *et al.*, 2000) (TAKAHASHI;IMAMURA;MAEKAWA, 1999)

Neste artigo há uma breve discussão da reflexão de Andreev na junção FM/SC/FM. Esta reflexão é comumente conhecida como a passagem do elétron do metal normal para o metal supercondutor. Seus potenciais químicos são equivalentes, porém, a energia do elétron incidente na borda, é menor que o *gap* supercondutor, assim o elétron deveria ser refletido. A energia e o momento são conservados, mas a velocidade muda (sentido oposto). Isto significa que o elétron refletido deveria ser considerado como um buraco.

Outra característica é a transformação dos elétrons da corrente no metal em pares de Cooper ao atravessarem a interface do estado normal para o supercondutor. No caso de um estado FM, ao invés de um metal normal, é necessário acrescentar a polarização magnética dos elétrons e o deslocamento na superfície de Fermi dos spins *up* e *down*.

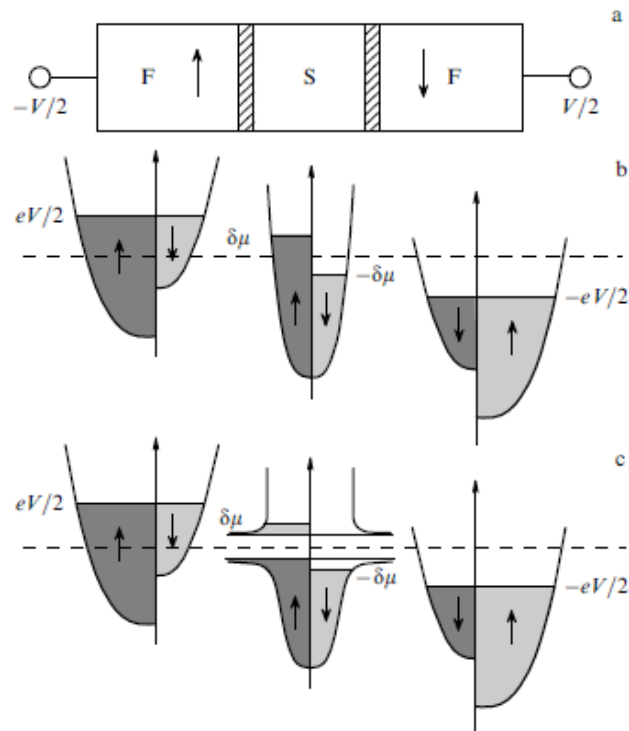


Figura 2.22: (a) Esquemas das camadas no tunelamento duplo da junção FM/SC/FM sob potencial V aplicado em uma configuração antiferromagnética (FM/SC/AF), e densidades de estado das quasipartículas com spin \uparrow e \downarrow no (b) estado normal e (c) estado supercondutor. (TAKAHASHI;IMAMURA;MAEKAWA, 1999)

SEFRIQUI et al. (2003), reportam o efeito de proximidade em super-redes de LCMO e YBCO no limite da espessura supercondutora. A Figura. 2.23 mostra as seções transversais das super-redes, (a) $\text{LCMO}_{3\text{cela}(1,08\text{nm})}/\text{YBCO}_{5\text{cela}(6,25\text{nm})}$ e (c) $\text{LCMO}_{15\text{cela}(5,4\text{nm})}/\text{YBCO}_{1\text{cela}(1,25\text{nm})}$, vistas ao microscópio eletrônico de transmissão e os respectivos difratogramas de raios X, (b) e (d), medidos e calculados. Estas duas super-redes tem o objetivo de estudar as características estruturais e elétricas no limite mínimo de aproximadamente 1nm de cada camada. As imagens de MET mostram as interfaces planas, indicando o alto grau de ordem estrutural. Os DRX mostram os picos de Bragg e seus satélites das super-redes. No cálculo teórico foi

utilizado o software SUPREX 9.0. Não foram achados indícios de incompatibilidade em sua rede, pois o refinamento não mostrou mudança no parâmetro de rede ao longo do eixo c .

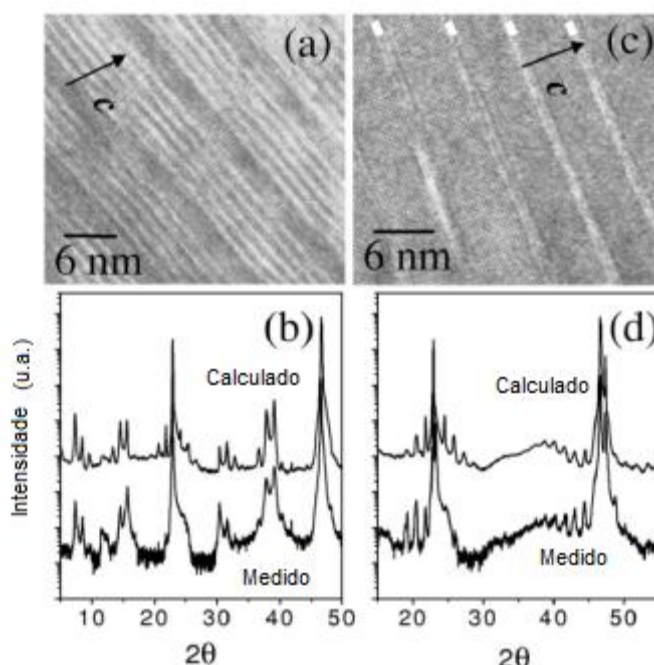


Figura 2.23: (a) Imagem de microscopia eletrônica de transmissão da seção transversal e (b) DRX calculado e medido da amostra ($\text{LCMO}_{3\text{cela}}/\text{YBCO}_{5\text{cela}}$). (c) Imagem da seção transversal (MET) e (d) DRX calculado e medido da amostra ($\text{LCMO}_{15\text{cela}}/\text{YBCO}_{1\text{cela}}$). (SEFRIQUI *et al.*, 2003)

A inserção da Figura 2.24(a) apresentam as medidas de resistência de um conjunto de amostras (que mantém a espessura de 2 celas unitárias de YBCO, e varia a espessura de LCMO a 3, 9, 15, 60 e 90 celas unitárias). As super-redes com camada de LCMO mais finas apresentam T_C com valores próximos às de amostra de YBCO *bulk*. A medida que se aumenta a espessura de LCMO, é possível observar uma sistemática diminuição de T_C . A transição metal-isolante é visível nas super-redes com LCMO mais espesso (com 60 e 90 celas unitárias). A Figura 2.24(a) mostra o retrocesso de T_C a medida que a espessura de LCMO é aumentada, principalmente para os casos maiores que 3 celas unitárias.

Medidas elétricas foram realizadas em dois conjuntos de amostras: um cuja espessura de YBCO é mantida em 5 celas unitárias, e a espessura de LCMO é variada entre 3 e 90 celas unitárias, Figura 2.24(a); e outro cuja espessura de LCMO

é mantida em 5 celas unitárias e a espessura de YBCO é variada entre 1 e 12 celas. Nos gráficos são mostradas as temperaturas críticas medidas em função do número de camadas variadas. As inserções mostram esquematicamente as medidas de resistência em função da temperatura destes conjuntos de amostras. No primeiro caso observa-se claramente a queda de T_c com o aumento da espessura de LCMO, até alcançar a supressão total da transição supercondutora. No segundo caso, a supercondutividade foi totalmente suprimida quando as super-redes possuem apenas 1 e 2 celas unitárias de espessura de YBCO. A supressão total da transição observada nestas medidas foi atribuída à descontinuidade das camadas de YBCO. É importante salientar que medidas de susceptibilidade também não mostraram evidências de supercondutividade nestas amostras.

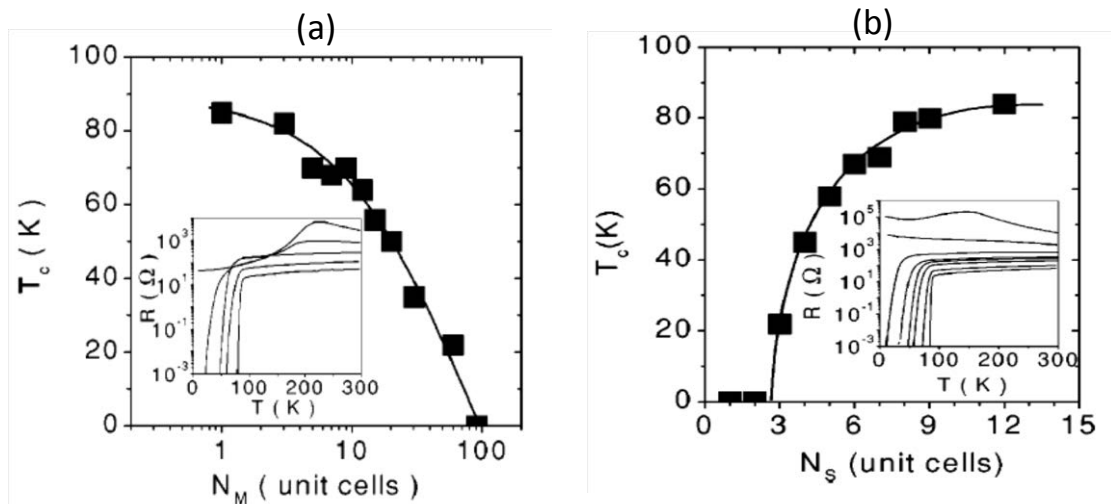


Figura 2.24: (a) Gráfico de T_c em função da espessura do LCMO, com YBCO fixo à 5 celas unitárias. A inserção mostra a resistência em função da temperatura para 3, 9, 15, 60 e 90 celas unitárias (de baixo para cima). (b) Gráfico de T_c em função da espessura do YBCO, com LCMO fixo à 5 celas unitárias. A inserção desta figura mostra a resistência em função da temperatura para 1, 2, 3, 4, 5, 6, 8 e 12 celas unitárias (de cima para baixo). (SEFRIQUI *et al.*, 2003)

O autor cita que a supressão da transição foi observada também em super-redes com materiais não-magnéticos, como em super-redes de YBCO/PBCO (VARELA *et al.*, 2002) (VARELA *et al.*, 1999) (KIM; HAN; KANG, 1997) (JAKOB *et al.*, 1993). SEFRIQUI *et al.* (2003) afirmam que, no seu trabalho, a supercondutividade das super-redes com camadas de uma cela unitária de YBCO foi

suprimida devido à presença de camadas magnéticas de 15 celas unitárias de LCMO (~5nm). Enquanto que a super-rede YBCO/PBCO com camadas de espessura de uma cela unitária de YBCO ainda se mostrou supercondutora, com T_c de 30K, na presença de camadas de 5 celas unitárias de PBCO (~6nm).

Segundo JAKOB *et al.* (1993), até mesmo uma camada de PBCO é suficiente para interromper as linhas de fluxo da rede e diminuir o comprimento de correlação das linhas de fluxo. De acordo com o autor, super-redes YBCO/PBCO com mais de 4 celas unitárias de YBCO, apresentam T_c próximo ao valor do YBCO *bulk*, considerando que seu estudo varia a espessura de PBCO de 1 a 10 celas unitárias. Porém, as super-redes de SEFRIOUI *et al.* (2003), 5 celas unitárias de YBCO, na presença de LCMO proporciona T_c de 50K, como ilustra Figura 2.24, indicando que o material entre as camadas de YBCO interfere diretamente as propriedades supercondutoras.

A deficiência de oxigênio é outro fator extrínseco que pode determinar a queda de T_c . Segundo BENZI; BOTTIZZO; RIZZI (2004) a variação de oxigênio age como fator regularizador das propriedades estruturais e elétricas do material. Considerando a estequiometria $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, na faixa de $0,5 < \delta < 1$, o YBCO encontra-se na fase tetragonal (não supercondutora). De $0,2 < \delta < 0,5$ começa a ocorrer a transição de fase tetragonal para ortorrômbica. Quando $\delta < 0,2$ o efeito supercondutor aparece e quando está completamente ortorrômbico sua T_c fica acima de 90K.

Também é discutido o efeito de proximidade entre as camadas FM/SC. O parâmetro de ordem da camada supercondutora decai com o comprimento de escala característico ξ_{SC} , que é dado por $\frac{\hbar D_S}{k_B T_C}$, equação 2.6, onde D_{SC} é o coeficiente de difusão de elétrons no supercondutor. Segundo o autor, o comprimento de escala dos planos CuO do YBCO é $\xi_{SC} = 0,6nm$, o que é relativamente próximo ao comprimento de coerência (ξ de 0,1 a 0,3nm). Este fato, permite que a supercondutividade exista ainda que em espessuras muito finas e na presença de uma camada magnética. Porém, a supercondutividade induzida em uma camada ferromagnética decai em comprimento de escala de $\xi_{FM} = \frac{\hbar v_F}{\Delta J_{spin}}$. Devido a larga

energia de troca do LCMO ($\Delta J_{spin} = 3eV$) e à velocidade de Fermi, v_F , de $7,4 \times 10^7$ cm/s, a expressão fornece o valor de ξ_{FM} de 0,2nm.

MORÁN et al. (2008) mostram que medidas magnéticas realizadas perpendicularmente à superfície de filmes finos do tipo *bi-layer* (FM/SC) e *tri-layers* (FM/SC/FM) e (FM/AF/SC), podem apresentar o Efeito Meissner Paramagnético (*Paramagnetic Meissner Effect* – PME). Este efeito é comumente observado em medidas realizadas aplicando um campo paralelo à superfície do filme. Neste trabalho o ferromagneto $La_{2/3}Ca_{1/3}MO_3$ (LCMO) e o supercondutor $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (YBCO) são os materiais usados em dois tipos de *tri-layers*: (FM/SC/FM) que corresponde a $LCMO_{78nm}/YBCO_{77nm}/LCMO_{78nm}$ e (FM/AF/SC) sendo $LCMO_{78nm}/La_{1/3}Ca_{2/3}MnO_{3(9nm)}/YBCO_{77nm}$.

O autor mostra que o difratograma de raios X dos materiais exibem a maioria das reflexões nas direções paralelas ao plano $[00 \ell]$, sugerindo o crescimento ao longo da direção c , e afirma ainda que as temperaturas críticas observadas ficaram entre aproximadamente 26K e 67K para as configurações FM/SC/FM e FM/AF/SC, respectivamente.

As curvas de histerese magnética determinadas a 5K para as amostras são mostradas na Figura 2.25(a), para a *tri-layer* FM/SC/FM e na Figura 2.25(b), para a FM/AF/SC. A medida feita na FM/SC/FM aplicando campo magnético perpendicular à superfície da *tri-layer* apresenta o comportamento diamagnético típico do supercondutor que foi associado à camada de YBCO. Enquanto o experimento feito aplicando o campo paralelamente à superfície evidenciou o comportamento ferromagnético da camada LCMO. Adicionalmente, o autor relaciona este comportamento anisotrópico perfeito com a alta qualidade da *tri-layer* e com interatividade de cada uma das fases FM e SC.

As curvas da Figura 2.25(b), referente ao FM/AF/SC, mostram comportamentos similares, com relação à direção do campo aplicado. Porém, a resposta diamagnética observada sob campo perpendicular foi cerca de duas ordens de grandeza maior que a resposta ferromagnética sob campo magnético paralelo.

Esta característica foi associada ao desacoplamento das camadas SC e FM promovido pela camada AF.

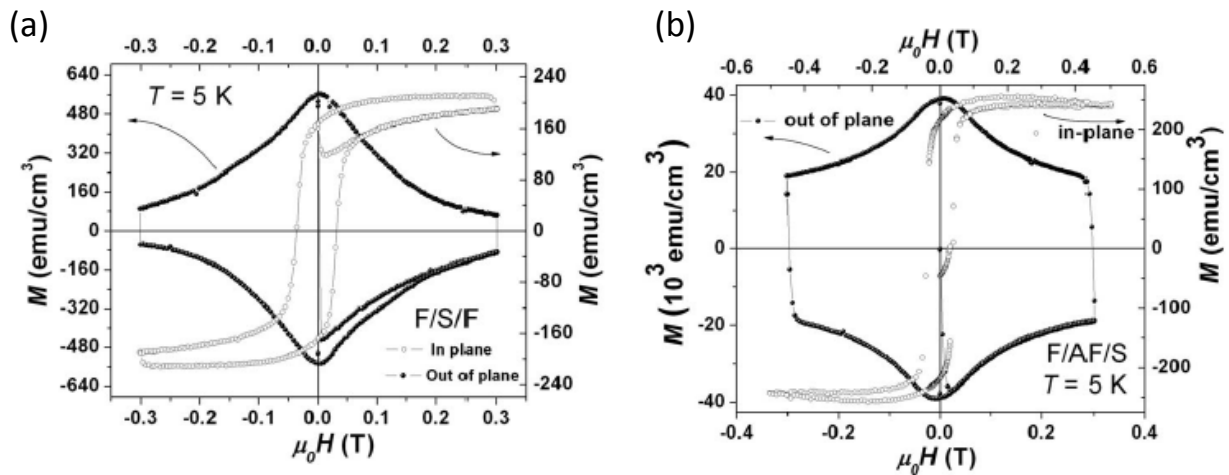


Figura 2.25: Curvas de histerese magnética obtidas para a configuração (a) FM/SC/FM e (b) FM/AF/SC, realizadas a 5K com o campo magnético aplicado paralelo (*in-plane*) e perpendicular (*out-of-plane*) à superfície da amostra. (MORÁN *et al.*, 2008)

Os gráficos da Figura 2.26 mostram as histereses magnéticas a 100K ($T > T_c$). As curvas para ambas as configurações de *tri-layer* mostram claramente que quando o campo é aplicado perpendicular à superfície não ocorre a saturação da magnetização. A forma do ciclo de histerese observado nestes gráficos corresponde a uma mistura dos comportamentos ferromagnético e paramagnético que foi relacionado à rugosidade intrínseca existente na interface entre FM/SC e FM/AF. De acordo com o autor, nas interfaces os vórtices podem estar distribuídos de forma aleatória. Por outro lado, como seria esperado para temperaturas acima da transição supercondutora, a curva de histerese obtida para a *tri-layer* FM/SC/FM (Figura 2.26(a)) sob campo paralelo foi típica de uma camada ferromagnética nesta temperatura. O autor não fez comentários sobre a ausência da curva *in-plane* para a configuração FM/AF/SC (Figura 2.26(b)).

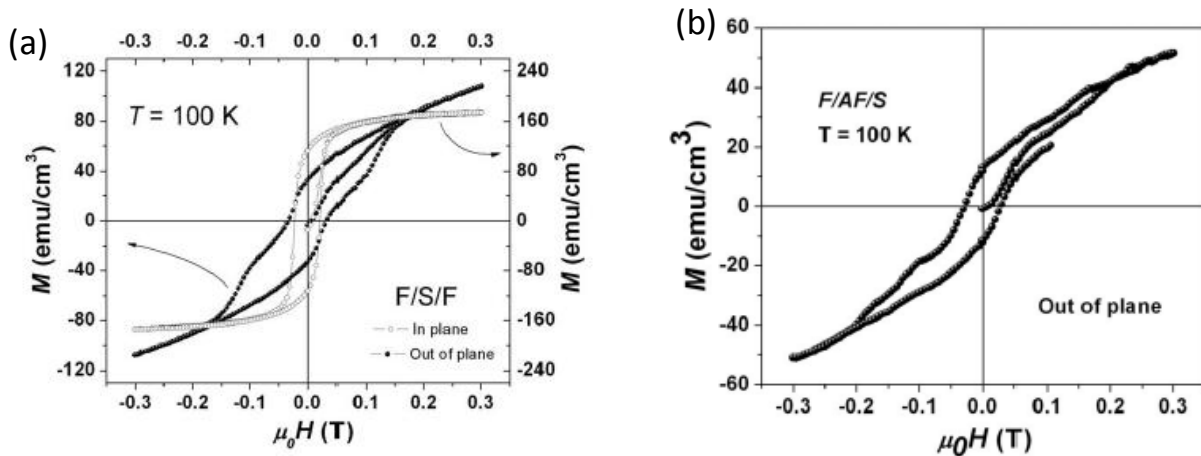


Figura 2.26: Curvas de histerese magnética do (a) FM/SC/FM e (b) FM/AF/SC, realizadas a 100K com o campo magnético aplicado paralelo (in plane) e perpendicular (out of plane) à superfície da amostra. (MORÁN *et al.*, 2008)

A anisotropia magnética também foi estudada por intermédio de curvas de magnetização em função da temperatura, sob ZFC e FC. A Figura 2.27(a) mostra as curvas obtidas para a amostra FM/SC/FM realizadas com campo magnético aplicado paralelo ($\mu_0 \vec{H}_{\parallel ab}$) e perpendicular ($\mu_0 \vec{H}_{\parallel c}$) à superfície da amostra. As medidas realizadas sob campo paralelo mostram $T_{\text{Curie}} \approx 250\text{K}$, tendo a curva ZFC uma pequena variação em sua inclinação associada à transição supercondutora em $\sim 26\text{K}$. No gráfico à direita, na medida realizada sob campo perpendicular, a curva ZFC mostra claramente T_c em $\sim 26\text{K}$, e $T_{\text{Curie}} \approx 250\text{K}$. Ainda neste gráfico, a curva FC apresenta um aumento considerável na magnetização exatamente em T_c , o qual foi suposto corresponder ao Efeito Meissner Paramagnético - PME. Em supercondutor de alta T_c o PME foi relacionado a existência de um estado *d-wave* pareado não convencional, que leva ao surgimento de supercorrentes espontâneas no supercondutor devido a presença de “contornos π ” (π -boundaries). Estes dão origem a uma contribuição paramagnética à susceptibilidade. Assim, as amostras que apresentam o PME consistiriam de redes de junção de Josephson formados por *weak links* entre os grãos supercondutores. É provável que o PME observado nas *tri-layers* sejam gerados por matrizes granulares existentes concomitantemente com a rugosidade intrínseca das interfaces FM/SC, SC/FM, FM/AF e AF/SC. A partir daí podem ser formados anéis supercondutores com núcleos ferromagnéticos ou antiferromagnéticos.

A Figura 2.27(b) ilustra as medidas realizadas com a amostra FM/AF/SC. A medida realizada paralela ao campo mostra comportamento ferromagnético, independente da curva ZFC ou FC. A curva ZFC realizada sob campo perpendicular mostra o comportamento diamagnético, abaixo de 70K, associado à camada supercondutora. Na curva FC, com campo na orientação perpendicular, é possível observar o comportamento ferromagnético (T_{Curie}) e o PME, em aproximadamente 265K e 70K, respectivamente. Este fato reforça mais uma vez a suposição de que a camada AF desacopla os efeitos da interface FM/SC. Assim, o PME é observado quando a amostra se encontra sob campo magnético perpendicular à sua superfície com o procedimento FC.

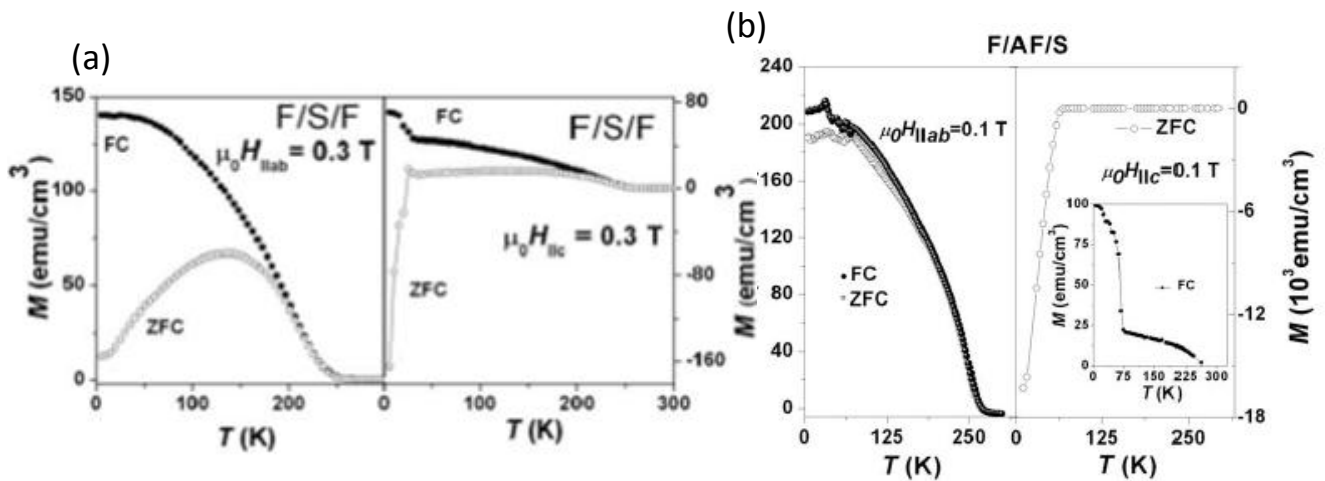


Figura 2.27: Curvas ZFC e FC das amostras (a) FM/SC/FM e (b) FM/AF/SC, realizadas sob aplicação de campo paralelo ($\mu_0 \vec{H}_{||ab}$) e perpendicular ($\mu_0 \vec{H}_{||c}$) à superfície da amostra. (MORÁN *et al.*, 2008)

3. TÉCNICAS DE CARACTERIZAÇÃO

1.2 MEDIDAS MAGNÉTICAS

As medidas magnéticas foram realizadas no equipamento MPMS – *Magnetic Property Measurement System* da Quantum Design™. Este magnetômetro é um equipamento de extrema sensibilidade, o qual, de acordo com o fabricante, pode medir fluxo magnético de até 3 ordens de grandeza menor que um fluxo quântico, dado por:

$$\phi_0 = \frac{h}{2e} = 2,0678 \times 10^{-15} Tm^2 \quad (3.1)$$

A energia associada a esta detecção muda em torno de $10^{-32} J$. (MCELFRESH; LI; SAGER, 2011)

O MPMS mede as mudanças locais da densidade de fluxo magnético produzidas pela amostra, que se move para cima e para baixo dentro da câmara (Figura 3.1(a)) onde se encontram as bobinas de detecção (Figura 3.1(b)). As bobinas são conectadas na entrada de um dispositivo de interferência quântica supercondutora, SQUID – *Superconducting Quantum Interference Device* - podendo detectar quando a amostra produz alguma mudança em sua corrente. O sistema de detecção é disposto geometricamente de modo a eliminar ruídos provindos da flutuação do campo magnético e também de objetos magnéticos próximo.

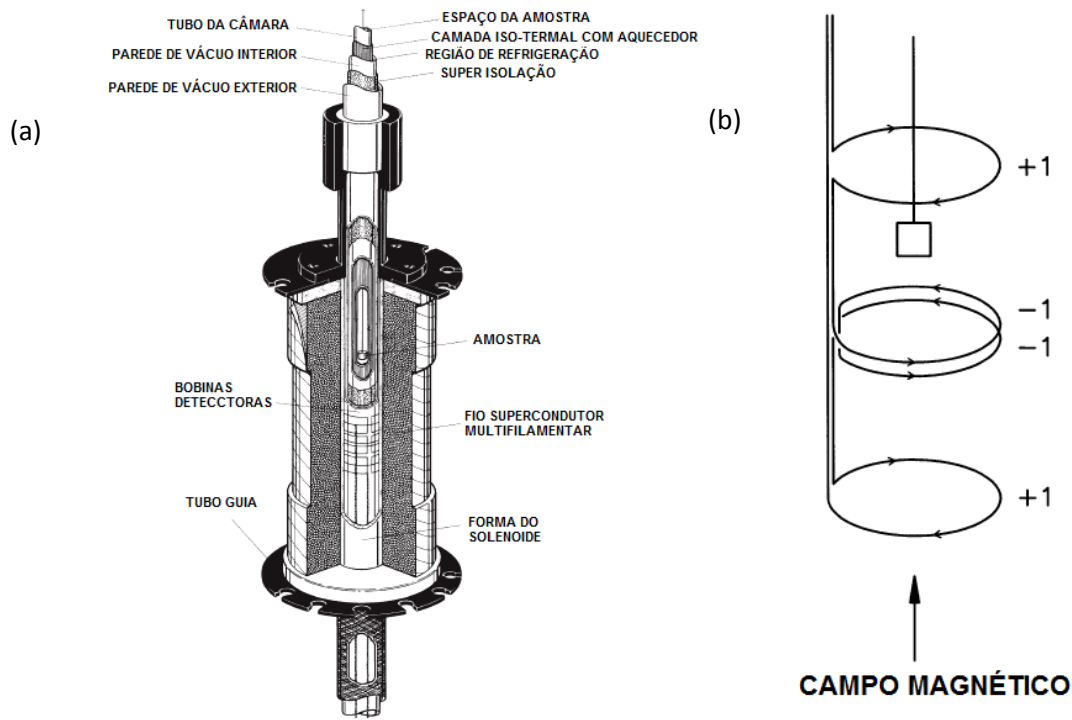


Figura 3.1: (a) Câmara do MPMS é termicamente isolada para detecção permanecer a 4,2K, a medida é feita monitorando o SQUID enquanto a amostra se move, (b) as bobinas de detecção localizadas no centro do magneto supercondutor. (MCELFRESH; LI; SAGER, 2011)

O momento magnético da amostra é determinado medindo a saída de tensão através do sistema de detecção SQUID. A unidade de momento magnético medida no equipamento está em unidades eletromagnéticas [emu] (*electromagnetic units*), e é definida por Ampère metro ao quadrado [Am^2] no SI. A magnetização, \vec{M} , é calculada dividindo o momento magnético, \vec{m} , pelo volume, V , massa ou número de mol, mostrada na equação abaixo:

$$\vec{M} = \frac{\vec{m}}{V} \quad (3.2)$$

A indução \vec{B} é dada em Gauss [G] que é definido por Tesla [T] no SI. Em relação à equação que define a indução \vec{B} , em termos de campo magnético aplicado \vec{H} e magnetização \vec{M} (GUIMALHÃES, 2009), temos:

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) \quad (3.3)$$

Onde, μ_0 é a permissividade magnética no vácuo. Sua unidade é Oersted [Oe], definido por Ampère por metro [A/m] no SI.

Outras informações da rotina de medidas utilizando o equipamento MPMS são as curvas de susceptibilidade magnética χ , que dependem da magnetização e do campo magnético aplicado, descrita pela equação:

$$\vec{M} = \chi \vec{H} \quad (3.4)$$

As figuras a seguir vão ilustrar as propriedades magnéticas existentes (paramagnetismo, ferromagnetismo, ferrimagnetismo e diamagnetismo), através das curvas obtidas no equipamento para cada tipo de material. Há duas medidas principais:

- ✓ M(H) – magnetização em função do campo aplicado; e
- ✓ M(T) – magnetização em função da temperatura.

Na Figura 3.2 as duas curvas obtidas para o caso de uma material paramagnético são ilustradas. A Figura 3.2(a) ilustra comportamento paramagnético em função da presença de átomos sem elétrons pareados. Isto é, a resposta magnética é a mesma independentemente do campo aplicado estar em processo de aumento ou de diminuição (ida e volta), não há histerese. A Figura 3.2(b) mostra que a susceptibilidade magnética decai exponencialmente em função da temperatura, curva típica de material paramagnético.

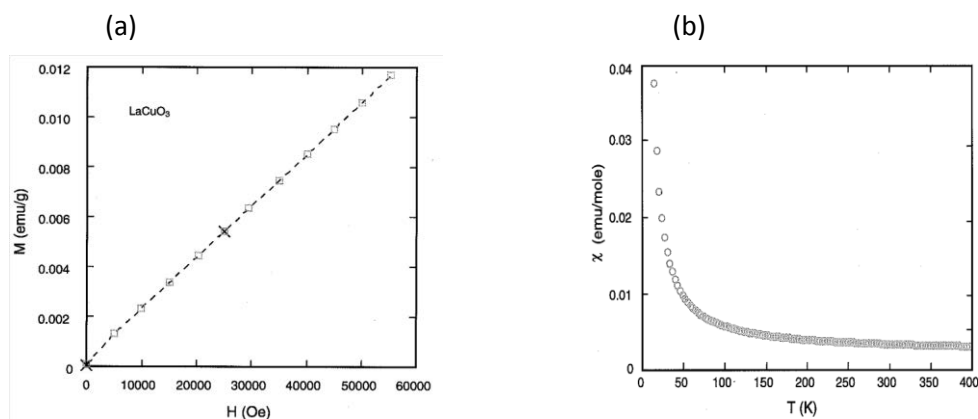


Figura 3.2: (a) Magnetização (M) em função do campo aplicado (H) para um composto que é paramagnético a 100K, e (b) susceptibilidade magnética (χ) em função da temperatura (T) para um material hipoteticamente paramagnético. (MCELFRESH, 1994)

Curvas de materiais ferromagnéticos apresentam comportamentos $M(H)$ e $M(T)$ bem distintos daqueles mostrados para o material paramagnético. As características mais importantes são a não linearidade e a não reversibilidade nas curvas de histerese magnética. A Figura 3.3 (a) ilustra a magnetização de saturação, M_s , da curva de histerese. O valor de magnetização dentro do material quando H retorna a zero, é chamada de magnetização remanente. Esta característica define os chamados ferromagnetos duros e moles que são definidos por uma curva de magnetização remanente larga ou estreita, respectivamente. O terceiro ponto descrito na figura é o campo coercivo (H_c), que representa a quantidade de campo magnético aplicado no sentido contrário necessária para que a magnetização dentro do material seja nula. No geral o ferromagneto apresenta irreversibilidade na curva $M(H)$, porém, sua curva $M(T)$ também apresenta uma dependência magnética como ilustra a Figura 3.3(b).

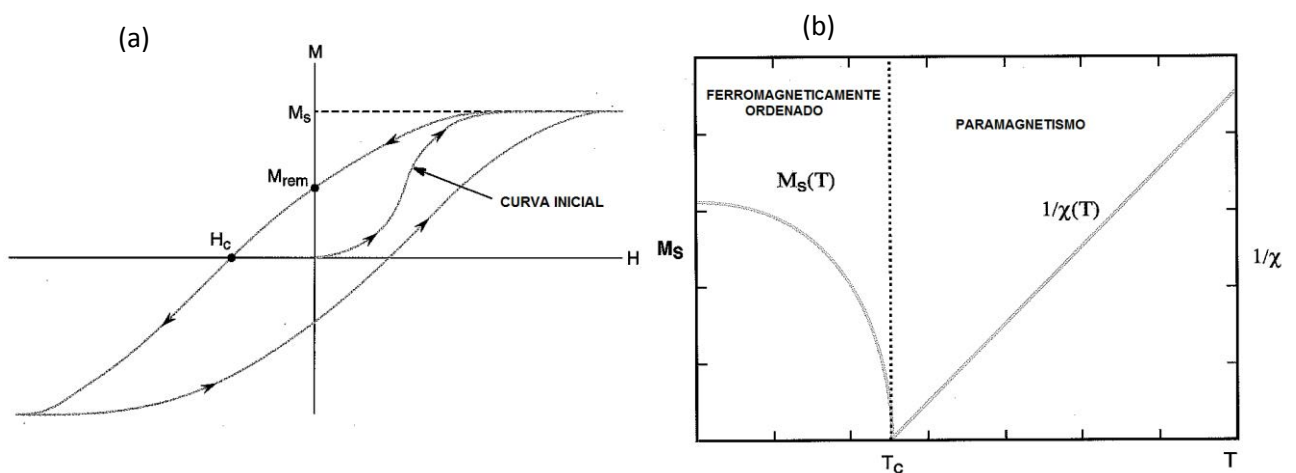


Figura 3.3: (a) Magnetização em função do campo a $T < T_{Curie}$. Estão indicados o sentido de aplicação do campo, a magnetização de saturação (M_s), magnetização remanente (M_{rem}) e o campo coercivo (H_c). (b) Acima de T_{Curie} um ferromagneto apresenta comportamento paramagnético, e abaixo de T_{Curie} , χ não é mais um parâmetro útil considerando sua dependência com o campo, porém M_s é importante nesta faixa de temperatura (MCELFRESH, 1994)

A Figura 3.4 mostra a irreversibilidade magnética, que é uma característica experimental de $M(T)$. Este gráfico é feito resfriando a amostra a campo zero, $H=0$, e após estabilizada a temperatura o campo magnético é aplicado e então iniciada a medida. O momento magnético é medido em função do aumento da temperatura,

este procedimento de medida é definido como curva ZFC – *Zero Field Cooling* (resfriamento a campo zero). Caso, após esta coleta de dados, o material seja resfriado outra vez sob campo aplicado de modo a coletar dados durante o resfriamento, este procedimento de medida é denominado FC – *Field Cooling* (resfriamento sob campo).

Alguns sistemas de criogenia são mais eficientes ao realizarem as curvas FCW - *Field Cooling Warming* e FCC - *Field Cooling Cooling*, respectivamente. Estes procedimentos descrevem em que sentido a medida do momento magnético foi realizada, durante o aquecimento ou do resfriamento, sempre sob campo aplicado.

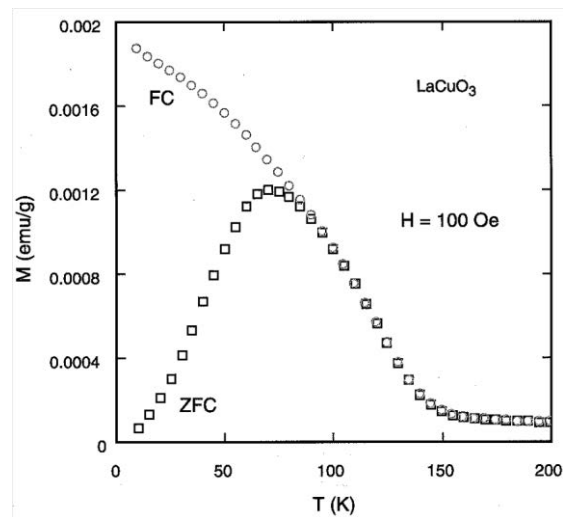


Figura 3.4: Magnetização em função da temperatura obtida por dois procedimentos: ZFC - a amostra é resfriada a $H=0$, em seguida o campo magnético é aplicado e os dados são coletados no aquecimento (quadrados); FC – a coleta de dados é feita no resfriamento com o mesmo campo aplicado desde o início (círculos). (MCELFRISH, 1994)

A Figura 3.5 representa a medida magnética realizada em um material antiferromagnético. Em um material antiferromagnético, os momentos magnéticos se alinham em direção opostas uns aos outros, de forma ordenada, a fim de cancelar os seus momentos magnéticos. O momento resultante pode ser nulo ou muito baixo. A temperatura de transição de um material antiferromagnético é chamada temperatura de Néel (T_N). Acima da temperatura de Néel (T_N) o antiferromagneto apresenta comportamento similar ao material paramagnético.

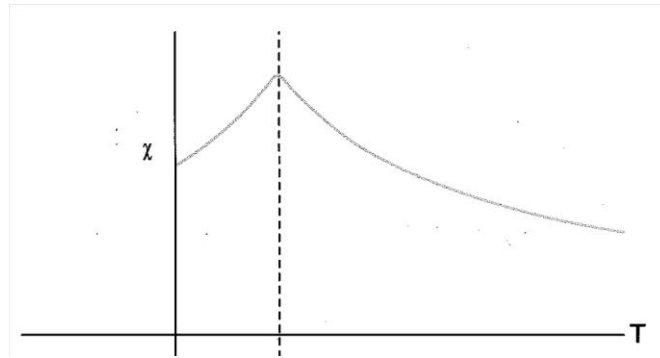


Figura 3.5: Susceptibilidade magnética em função da temperatura em um material antiferromagnético.. (MCELFRESH, 1994)

Para um comportamento diamagnético, a medida de susceptibilidade magnética em função do campo aplicado é linear, reversível e de inclinação (*slope*) negativa. A Figura 3.6 ilustra a curva de susceptibilidade magnética em função da temperatura para um supercondutor. Nela é possível observar a temperatura crítica (T_C) do supercondutor, isto é, a temperatura onde o material, ao ser aquecido, passa do estado supercondutor para o estado normal, considerando uma medida ZFC. Considerando um supercondutor ideal, quando resfriado através da medida FC, o campo magnético será expelido de dentro do supercondutor a partir de T_C , através do Efeito Meissner. A T_{irr} indica a temperatura onde o comportamento da medida ZFC e FC é irreversível, pois, a expulsão das linhas de campo magnético comportam-se de forma diferente quando entram ou saem da amostra.

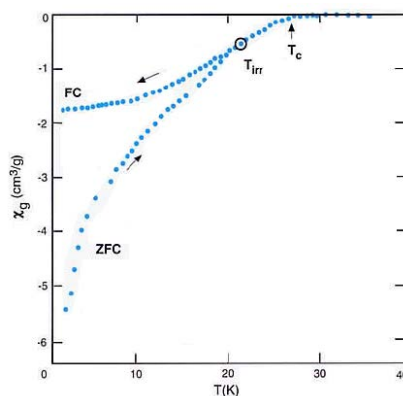


Figura 3.6: Susceptibilidade em função da temperatura para o caso supercondutor (LaSrCuO), onde é indicada a T_C e a T_{irr} , na curva de aquecimento (ZFC) e no resfriamento (FC), como indicado. (MCELFRESH, 1994)

A Figura 3.7, ilustra o comportamento do supercondutor, obtido utilizando o MPMS. A Figura 3.7(a) ilustra o comportamento do supercondutor do tipo I, enquanto que a Figura 3.7(b) ilustra o tipo II. Como é possível observar em ambas figuras, a diferença entre eles encontra-se na queda abrupta da supercondutividade, no caso do tipo I, e a queda da supercondutividade de forma suave, em função do estado misto existente após o primeiro campo crítico H_{C1} , até o desaparecimento da supercondutividade, em H_{C2} . A curva de histerese é hipotética para o caso de um supercondutor perfeito. Ao ser adicionado defeitos a esta estrutura, o gráfico de histerese fica similar ao da Figura 3.8.

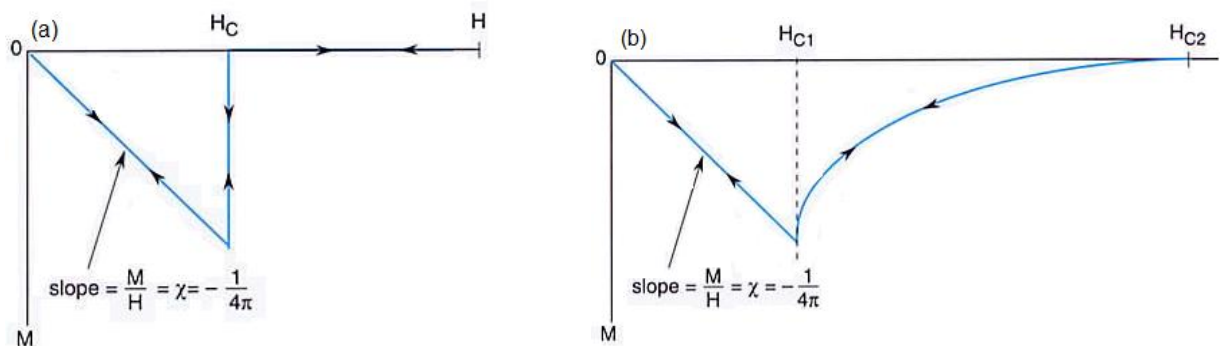


Figura 3.7: Comportamento do material supercondutor do tipo I (a) e tipo II (b), em função do campo magnético aplicado. (MCELFRESH, 1994)

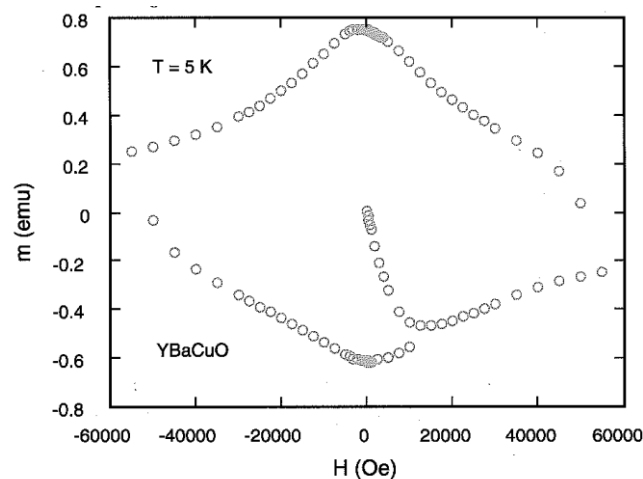


Figura 3.8: Magnetização em função do campo para o caso de um supercondutor que apresenta irreversibilidade magnética associada à *flux pinning*, YBCO a 5K. (MCELFRESH, 1994)

Um importante parâmetro na supercondutividade é a densidade de corrente crítica (J_c), e pode ser calculada com base na quantidade de supercorrentes elétricas, e determinada a partir dos valores de magnetização. A relação estabelecida entre a magnetização e a densidade de corrente crítica é denominada Modelo de Estado Crítico de Bean (BEAN, 1964):

$$J_c = \frac{sM}{d} \quad (3.5)$$

Onde: s é a constante dependente da forma e d é o comprimento ou o diâmetro da amostra.

A largura da histerese, que é obtida através da curva exposta na Figura 3.8, é obtida da seguinte forma:

$$\Delta M = |M_+| - |M_-| \quad (3.6)$$

onde: M_+ e M_- são a magnetização superior e inferior, respectivamente.

Com base no modelo de Bean, equação (3.5), o cálculo de J_c foi formulado em função do equipamento no qual é feito a medida de magnetização. Desta forma é utilizada a equação estendida do modelo de Bean (PAN; PYSARENKO; DOU, 2006):

$$J_c = \frac{20 \cdot \Delta M}{(a \cdot b \cdot c) \cdot a \cdot \left[1 - \left(\frac{a}{3b} \right) \right]} \quad (3.7)$$

Onde: a , b e c são as dimensões do filme fino em metros e ΔM é largura da curva de histerese em cada ponto do campo magnético. A unidade de J_c no SI é $[A \cdot m^2]$.

As curvas de magnetização em função da temperatura foram utilizadas para se determinar a temperatura crítica (T_c) e temperatura de Curie (T_{Curie}), e a curva de magnetização em função do campo magnético aplicado, foi utilizada para determinar a densidade de corrente crítica (J_c) e a força de aprisionamento (F_p).

3.2 MEDIDA ELÉTRICA

Normalmente, as medidas elétricas são realizadas no PPMS – *Physical Property Measurement System* (Sistema de Medidas de Propriedades Físicas), porém, o MPMS utilizado possui uma adaptação, com suporte para filme fino de no máximo 5x5mm² de área, e fonte de corrente para realização de medidas elétricas.

As medidas de transporte feitas com a leitura da tensão (proporcional à resistividade) em função da temperatura foram realizadas utilizando o método das quatro pontas (VAN DER PAUW, 1958). Neste método, dois fios são conectados na extremidade da amostra com o objetivo de aplicação de corrente elétrica e outros dois fios são conectados ao longo da amostra para medir a tensão gerada, como ilustra a Figura 3.9.

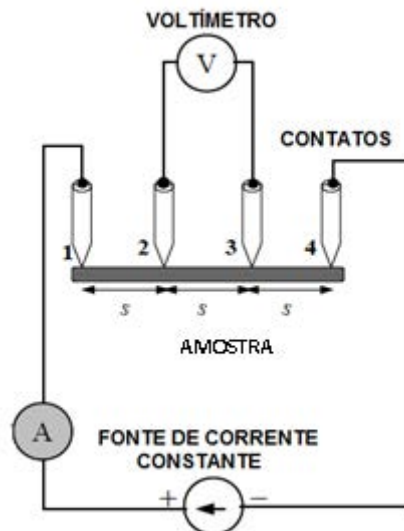


Figura 3.9: Método das quatro pontas medindo a resistividade de uma amostra. (←) representa a fonte, (A) um amperímetro, (V) o voltímetro e (S) a distância entre cada contato. (GIROTTTO; SANTOS, 2002)

Através desta tensão medida, é possível utilizar a Lei de Ohm para calcular a resistência do material a uma temperatura constante. Isto indica que a resistência da amostra tem dependência com a temperatura.

$$V = Ri \quad (3.8)$$

Onde: V é a tensão medida [V], R é a resistência [Ω] e i é a corrente aplicada [A].

Com o conhecimento da resistência, é possível calcular a resistividade do material em função da sua dimensão como mostra a equação (3.9).

$$\rho = \frac{A}{L} R \quad (3.9)$$

Onde: ρ é a resistividade do material, R é a resistência, A e L são a área da seção transversal e o comprimento da amostra.

No caso dos filmes testados neste trabalho, os contatos para as medidas de corrente e tensão foram fixados com tinta prata na ponte feita por litografia, como ilustra a Figura 3.10. Neste caso, a área A foi calculada utilizando a largura da ponte ($25\mu\text{m}$) vezes a espessura do supercondutor YBCO (400nm) e o comprimento L da amostra (5mm).

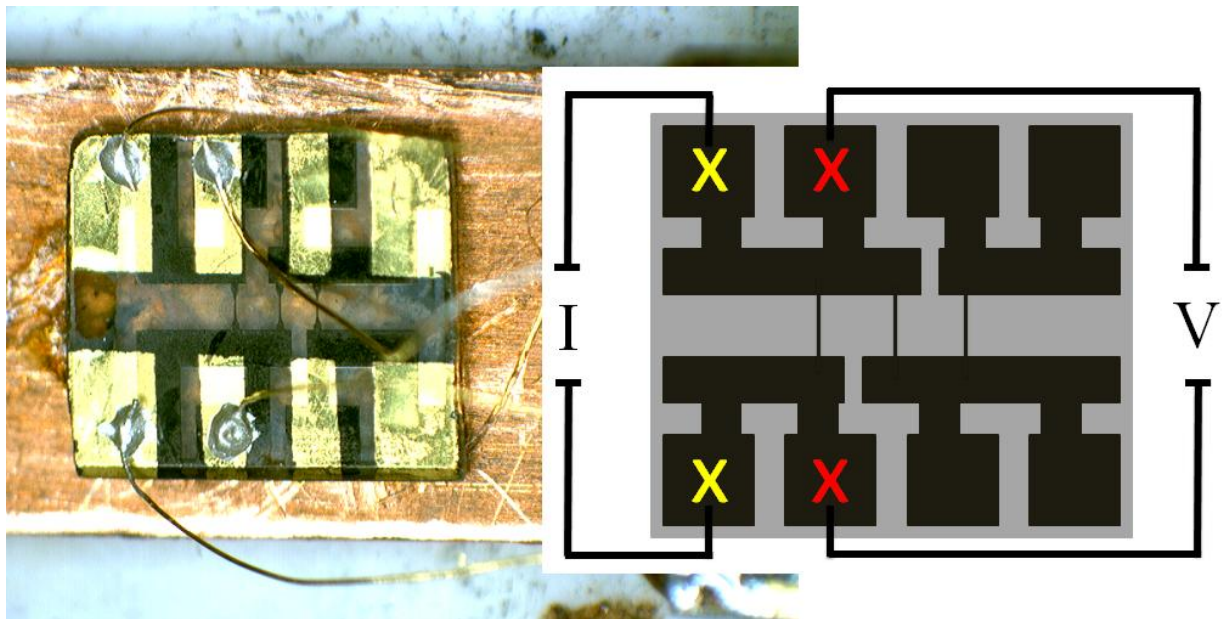


Figura 3.10: Posicionamento da amostra no suporte para medidas elétricas e seu modelo.

4. METODOLOGIAS

Todos os filmes finos produzidos para este trabalho seguiram o procedimento e os parâmetros já estabelecidos para filmes supercondutores de alta qualidade. Os filmes foram preparados pela técnica PLD – *Pulsed Laser Deposition* – nas instalações do *Thin Film Technology Group*, do Institute for Superconducting and Electronic Materials, University of Wollongong, Austrália, que possuem tradição no crescimento de filme fino por esta técnica. O estágio neste grupo propiciou o treinamento necessário, além do acompanhamento por outros pesquisadores mais experientes, para a utilização do equipamento e da técnica. Todos os parâmetros necessários para deposição de filmes de alta qualidade foram estabelecidos pelo grupo e publicados em vários artigos (PAN *et al.*, 2012) (FEDOSEEV *et al.*, 2013) (FEDOSEEV *et al.*, 2012) (SHCHERBAKOVA *et al.*, 2012)

A seção a seguir apresenta o procedimento básico de preparação de filme fino pela técnica de deposição por laser pulsado, PLD.

4.1 DEPOSIÇÃO DE FILME FINO YBCO POR PLD

A sequência de preparação dos filmes finos foi a mesma em todos os casos, a saber: (i) Limpeza e fixação do substrato no suporte; (ii) Vácuo e aquecimento do suporte dentro da câmara; (iii) Deposição; (iv) Recozimento.

(i) Limpeza e fixação do substrato

O suporte do substrato também sofre deposição, conseqüentemente, após cada deposição, é necessário submetê-lo também a um processo de limpeza com uma lixa de papel de baixa rugosidade. Em seguida à esta limpeza, o substrato com cerca de 1x1 cm² é fixado no suporte com tinta prata comercial. Na Figura 4.1 é mostrado o suporte (a) antes e (b) depois da deposição do filme.

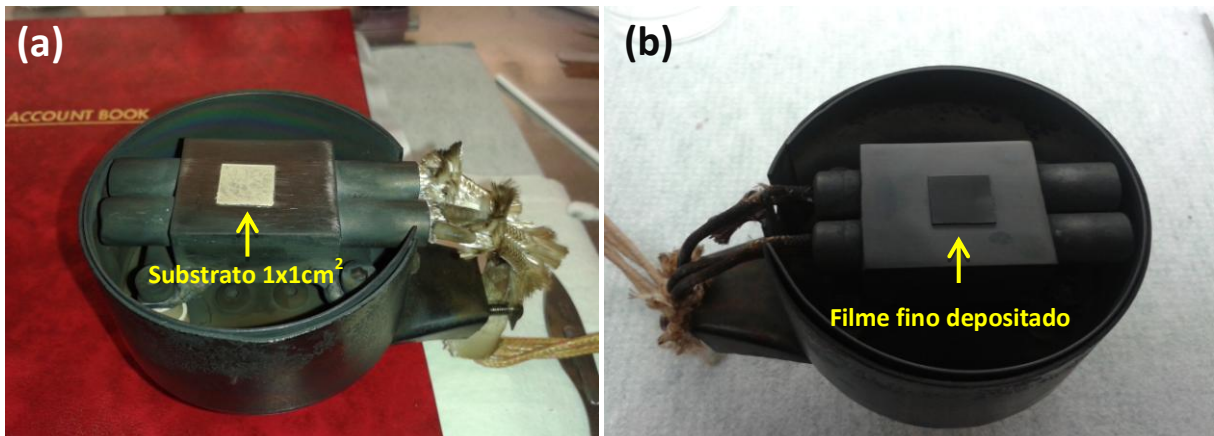


Figura 4.1: Suporte aquecedor (a) antes e (b) depois da deposição do filme fino.

Para acelerar a secagem da tinta prata, o suporte foi colocado sob fluxo de ar quente por aproximadamente 10 minutos. Para a deposição das super-redes, o substrato utilizado foi o LaAlO_3 (LAO).

(ii) *Vácuo e aquecimento do suporte*

Uma vez colocado o suporte com o substrato e feitas as conexões do termopar e da fiação do aquecedor, faz-se vácuo dentro da câmara. Inicialmente a bomba de alto vácuo (primária) atua por aproximadamente 20 minutos, atingindo no mínimo 300 torr. Neste ponto liga-se a bomba turbo e desliga-se a bomba de alto vácuo.

Normalmente este procedimento é feito durante a noite, pois requer ao menos 6 horas para se atingir um bom vácuo, com pressão menor que 10^{-6} torr. Após atingir a pressão requerida, inicia-se o aquecimento do suporte com o substrato sob uma taxa de $20^\circ\text{C}/\text{min}$ até a temperatura de deposição, 780°C .

Ao atingir os parâmetros de vácuo e temperatura, é desligada a bomba turbo e novamente ligada a bomba de alto vácuo. Porém, um fluxo de oxigênio é mantido na câmara à 300mtorr, a fim de formar a pluma de plasma necessária para a deposição.

(iii) Deposição

O sistema de deposição PLD está ilustrado na Figura 2.2, e possui todos os parâmetros controlados por programas. O laser excimer de KrF (comprimento de onda 248nm) é excitado à um fluxo de $\sim 3\text{-}4\text{J}/\text{cm}^2$ com uma frequência de 5Hz, controlado por um programa desenvolvido pelo grupo, por meio do qual é possível controlar a faixa de energia do excimer laser.

O carrossel, onde se encontram os alvos nos quais o laser incide, também é controlado por um programa desenvolvido pelo próprio grupo. Para o caso de deposição em substrato de LAO, é necessário a deposição prévia de uma fina camada, aproximadamente 4nm, de STO, para melhor orientação epitaxial do YBCO que será depositado em seguida, denominada camada *buffer*.

Estabelecidos os principais parâmetros do laser e a sequência dos alvos no carrossel, aproxima-se o suporte com o substrato à 35mm dos alvos e inicia-se a deposição. Os demais parâmetros da deposição dependem da arquitetura de cada um dos filmes a ser depositado.

(iv) Recozimento

Ao término da deposição, a temperatura é reduzida para 400°C, à taxa de 20°C/min. O recozimento é feito por uma hora em temperatura constante de 400°C e a 1atm de oxigênio, para a correta estequiometria de oxigênio no YBCO. Após o recozimento, o aquecedor é desligado e resfriado naturalmente até temperatura ambiente.

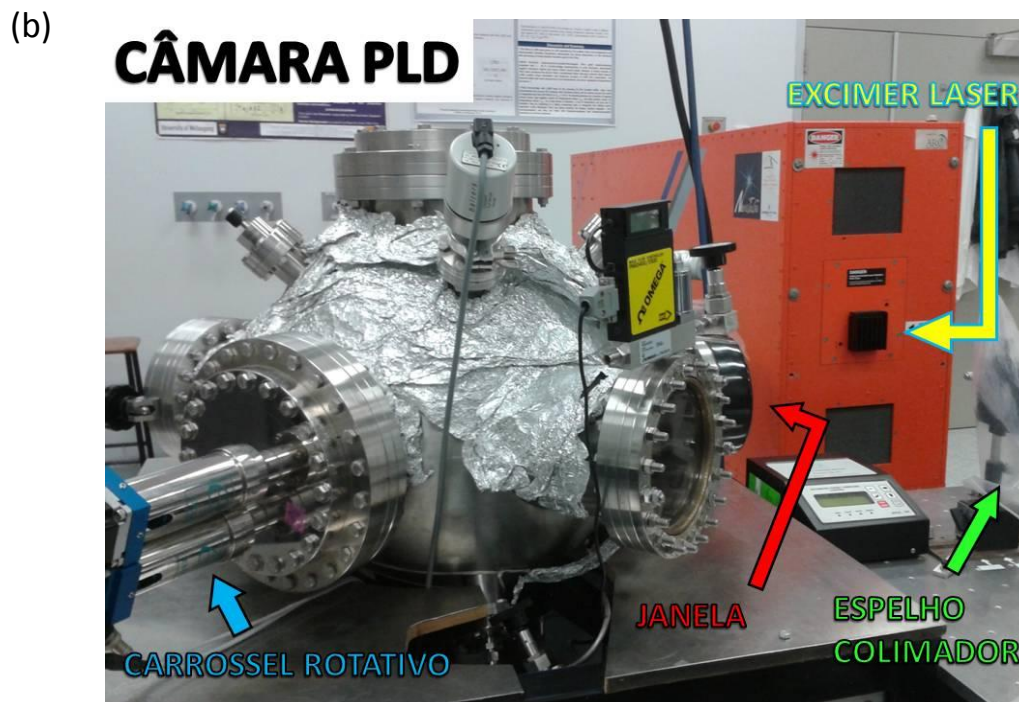
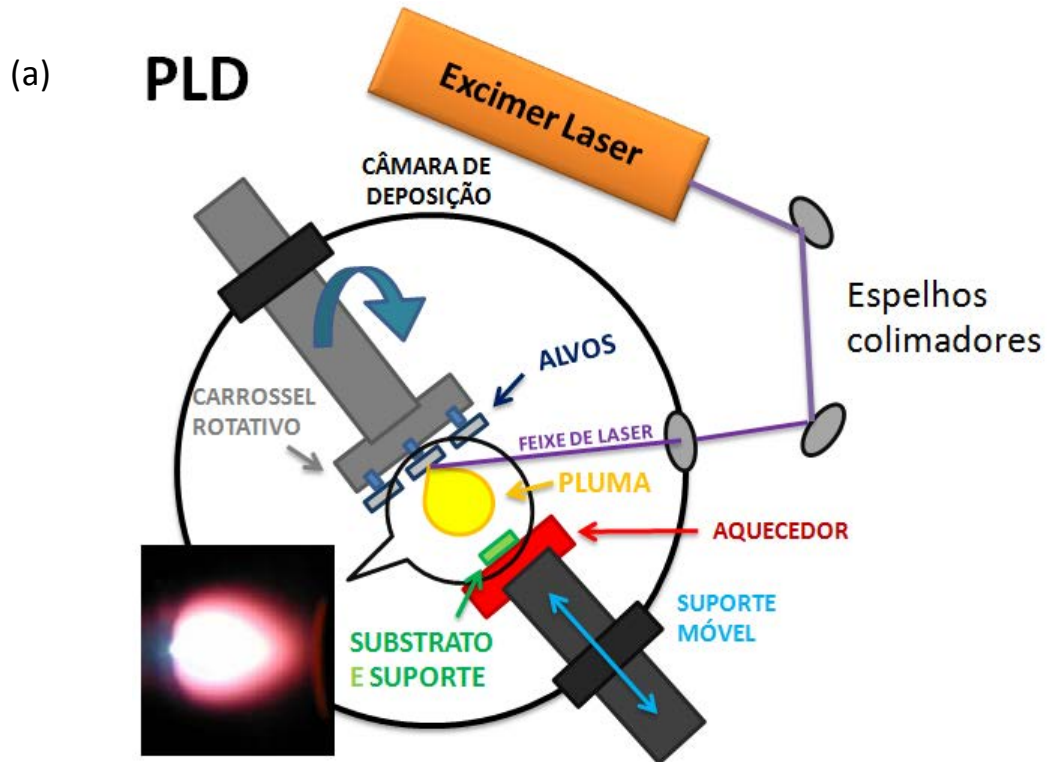


Figura 2.2: Técnica de deposição à laser pulsado (PLD). (a) esquema de funcionamento de cada parte e (b) imagem externa da câmara de deposição utilizada.

4.2 SUPER-REDES (*SUPERLATTICES*) – SC/ISOLANTE/FM

Para a fabricação das super-redes com a sequência **S/I/F** (Supercondutor/Isolante/Ferromagneto), foram utilizados os procedimentos descritos na seção 4.1. Porém, na etapa de deposição (iii), foram estabelecidos os parâmetros especificados a seguir.

O substrato utilizado foi o LAO ($1 \times 1 \text{ cm}^2$) com uma camada de 4nm de STO (*buffer*). As super-redes preparadas possuem 20 repetições de uma mesma sequência, como ilustra a Figura 4.3. Esta sequência possui uma camada de supercondutor YBCO, seguida de uma camada isolante, um material ferromagnético $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (LCMO) e mais uma camada de material isolante. Na Figura 4.3 o material isolante é o STO. Porém, outros materiais também foram estudados e serão apresentados posteriormente.

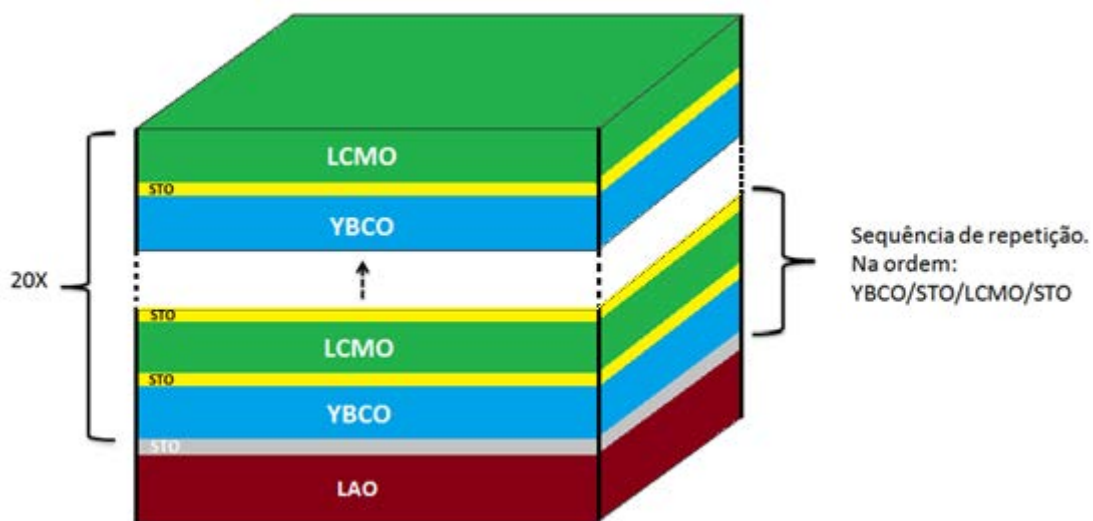


Figura 4.3: Esquema das super-redes de 20 repetições.

Na sequência, nas Tabelas 4.1, 4.2, 4.3 e 4.4, são descritos os conjuntos de super-redes organizados segundo as espessuras das camadas YBCO, LCMO e do material e espessura dos isolantes: SrTiO_3 (STO), CeO_2 (CE) e $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ (PBCO ou PB). A espessura total foi estimada por cálculo.

Tabela 4.1: Primeiro conjunto: $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{STO}_{d_i}/\text{LCMO}_{10\text{nm}})_{\times 20}$.

ST1	d_s (nm)	d_i (nm)	d_F (nm)	Espessura Total (nm)
SL1-0	20	0	10	600
ST1-2	20	2	10	640
ST1-4	20	4	10	680
ST1-8	20	8	10	760

Tabela 4.2: Segundo conjunto: $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{STO}_{d_i}/\text{LCMO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$.

ST2	d_s (nm)	d_i (nm)	d_F (nm)	Espessura Total (nm)	Espessura Medida (nm)
SL2-0	20	0	20	800	800
ST2-2	20	2	20	840	800
ST2-4	20	4	20	880	900
ST2-8	20	8	20	960	1000

Tabela 4.3: Terceiro conjunto: $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{CE}_{d_i}/\text{LCMO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$.

CE	d_s (nm)	d_i (nm)	d_F (nm)	Espessura Total (nm)
CE2	20	2	20	840
CE4	20	4	20	880
CE8	20	8	20	960
CE16	20	16	20	1120

Tabela 4.4: Quarto conjunto: $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{PBCO}_{d_i}/\text{LCMO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$.

PBCO	d_s (nm)	d_i (nm)	d_F (nm)	Espessura Total (nm)
PB1/2	20	~0.5	20	800
PB2	20	2	20	840
PB4	20	4	20	880
PB8	20	8	20	960
PB20	20	20	20	1200

4.3 CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS

4.3.1 DIFRAÇÃO DE RAIOS X

As análises de raios X foram realizadas no equipamento RIGAKU DMAX-PC, pertencente ao laboratório multiusuário do Departamento de Física, Faculdade de Ciências, Unesp-Bauru. As medidas foram realizadas pelo método do pó ($2\theta/\theta$), em temperatura ambiente ($\sim 22^\circ\text{C}$), voltagem de 40kV e corrente de 20mA. Sua radiação é na linha $K_{\alpha 1}$ do cobre, com comprimento de onda 1,5406Å.

4.3.2 MICROSCOPIA

O JSM-7500FA, instalado no Centro de Microscopia Eletrônica do Australian Institute for Innovative Materials, AIIM/UoW foi utilizado para extrair imagens das superfícies das super-redes preparadas com diferentes espessuras e tipos de camadas.

O equipamento FEI Magellan 400L, instalado no Laboratório de Caracterização Estrutural, DEMa/UFSCar, foi utilizado para observar a seção transversal das super-redes e superfícies, a fim de verificar o crescimento epitaxial.

Para obtenção das imagens da superfície, as amostras foram limpas com álcool isopropílico e fixadas no suporte usando tinta prata. As imagens que mostram as estruturas de camadas foram obtidas a partir da fractura das super-redes. Para isso a superfície contrária à da super-rede foi cortada com o auxílio de um cortador de vidro diamantado, e, em seguida, foi pressionada para ocasionar a quebra ao longo da linha de corte. A fixação com tinta prata foi feita de forma a expor a seção transversal da super-rede.

4.3.3 LITOGRAFIA E PROFILOMETRIA

O modelo de gravura utilizado na preparação das super-redes para as medidas elétricas é formada por três pontes de $25\mu\text{m}$ de largura, conforme ilustra a Figura 4.5.

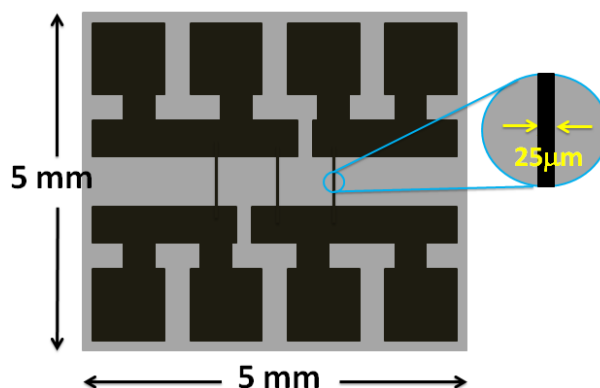


Figura 4.5: Filme fino com gravura de 3 pontes de $25\mu\text{m}$ cada largura.

O processo de confecção da gravura adotado pelo grupo de pesquisa está esquematizado na Figura 4.6. Consiste em depositar, (b) por *spin coating*, uma fina camada de fotoresistor S1318 sobre o filme. Para isso foi utilizado o *spin-coater* Cee® 200X da Brewer Science, com rotação de 4000rpm, por 60 segundos. Para melhorar a adesão da camada de fotoresistor no filme fino, este é (c) colocado sobre uma chapa aquecida à 115°C por 60 segundos.

Coberto com esta fina camada de fotoresistor, o filme é (d) colocado em contato direto com a máscara, feita de chumbo, e em seguida (e) sofre uma exposição de luz de tungstênio por 60 segundos. A amostra é novamente (f) colocada na chapa aquecida, agora à 125°C por 60 segundos. Assim que o substrato volta à temperatura ambiente, (g) ele é mergulhado no *developer* por 60 segundos, para remoção do fotoresistor exposto à luz. Para cessar o processo químico do *developer*, (h) um jato de água destilada é esguichado sobre o filme. Para finalizar o processo, (i) a peça é mergulhada numa solução ácida de NH_3 a fim de remover o filme fino que sofreu exposição da luz, restando apenas o desenho. (j) Para cessar o processo químico do ácido, o filme fino é limpo com água destilada e o fotoresistor restante é retirado com acetona e algodão.

Em alguns casos a remoção do fotoresistor foi realizada por meio de um processo físico, a incidência de feixe de íons usando o *ion milling etching* da

MANTIS Deposition LTD, adaptado em uma câmara secundária acoplada ao equipamento de sputtering da mesma marca. Não foi possível fazer o mesmo com todas as amostras pois o equipamento foi isolado por precisar de reconfiguração de parâmetros.

A profilometria foi utilizada para medir as espessuras das camadas das super-redes com o auxílio das gravuras feitas para a medida elétrica. O equipamento utilizado foi o DEKTAK® 6M Stylus da Veeco™, Figura 4.7.

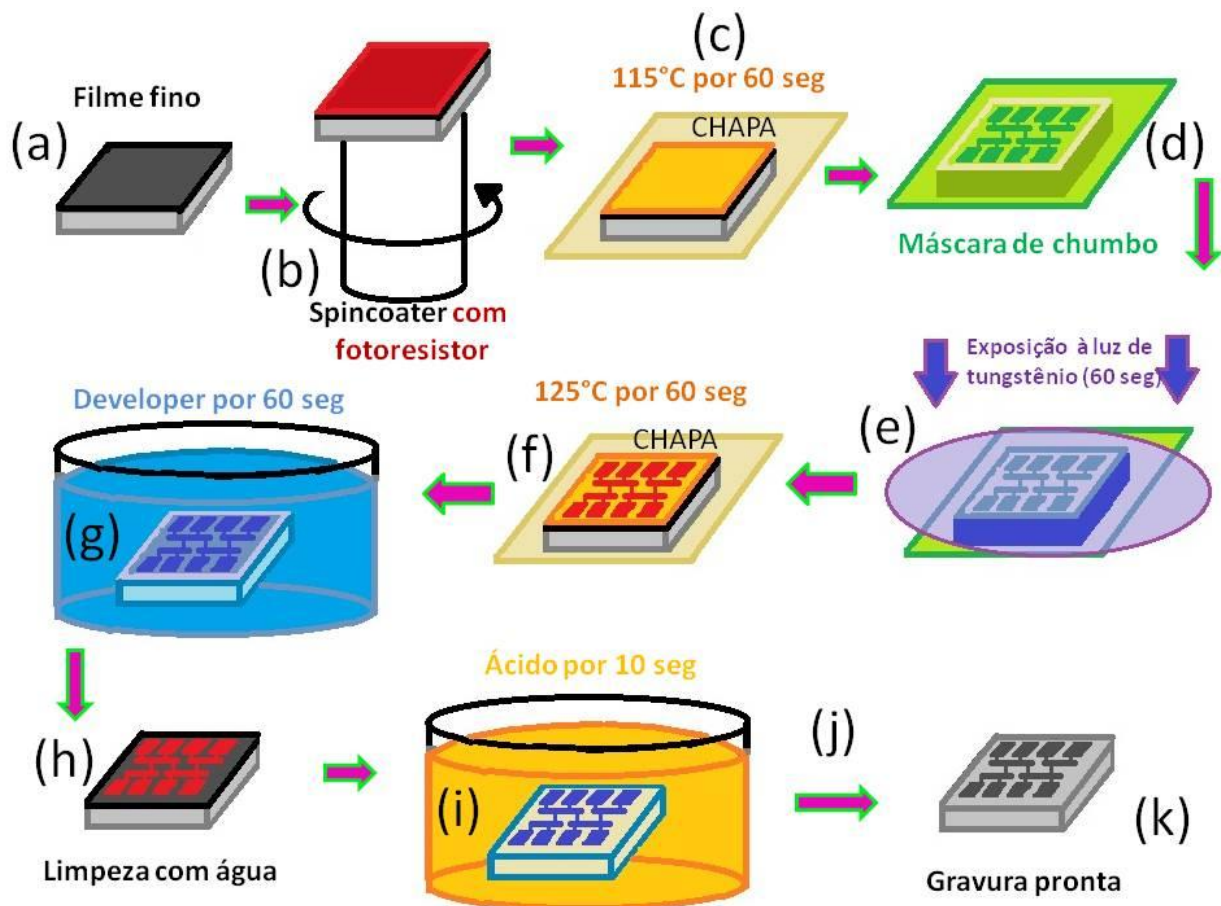


Figura 4.6: Processo de gravura: (a) substrato com o filme fino; (b) deposição de fina camada de fotoresistor utilizando um *spincoater*; (c) aquecimento com o fotoresistor a 115°C por 60s; (d) a máscara de chumbo é colocada em contato com o fotoresistor; (e) exposição à luz de tungstênio por 60s; (f) aquecimento da peça a 125°C por 60s; (g) submersão do filme fino no *developer* por 60s; (h) neutralização do *developer* com água; (i) submersão da peça no ácido por no máximo 10s; (j) neutralização do ácido com água e limpeza do fotoresistor com acetona e (k) processo de gravura concluído.

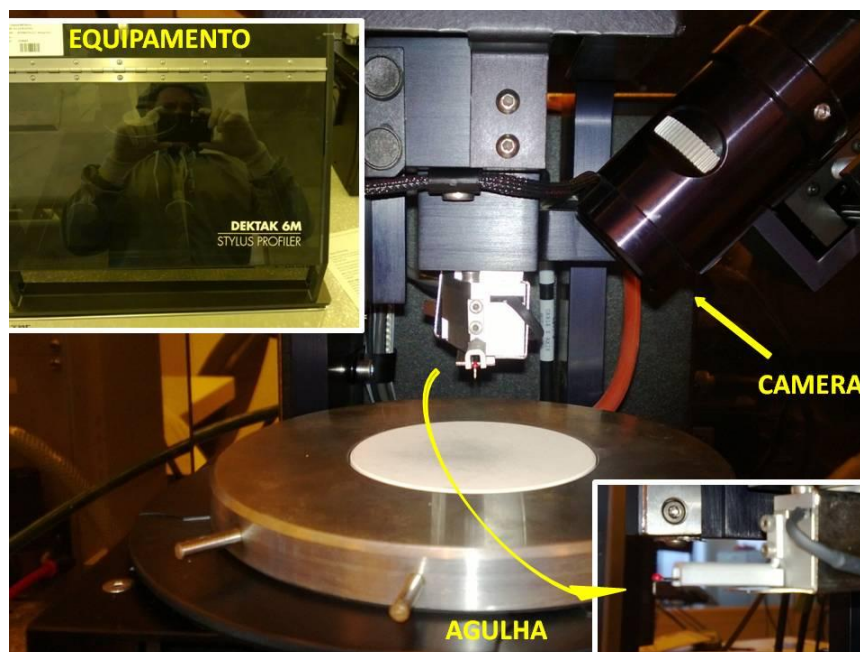


Figura 4.7: Interior do equipamento de profilometria – Dektak 6M, a inserção superior mostra o exterior do equipamento, e a inserção inferior mostra a agulha utilizada na técnica.

4.3.4 MEDIDAS MAGNÉTICAS E ELÉTRICAS

As medidas magnéticas foram feitas no Magnetômetro SQUID – *Magnetic Property Measurement System* – MPMS XL da Quantum Design (vide Figura 4.8), pertencente ao Australian Institute for Innovative Materials, Universidade of Wollongong – Innovation Campus, AIIM/UoW. O comportamento das amostras sob campo magnético foi determinado usando dois tipos de medidas.

1- Magnetização da amostra em função da temperatura sob campo magnético constante aplicado

As medidas das super-redes foram executadas em etapas. A amostra era resfriada até 10 K sem aplicação de campo magnético (ZFC), e em seguida era iniciado o processo de aquecimento até 300K sob campo magnético aplicado. Na sequência o momento magnético é medido enquanto a amostra é resfriada até 10K ainda sob o mesmo campo magnético (FC). As curvas de momento magnético versus temperatura foram obtidas para campos de 10, 25, 50, 100, 500, 5000 e

10000 Oe. Devido à anisotropia das manganitas ($-\text{MnO}_3$) foram aplicadas as duas orientações do campo magnético, perpendicular $B \perp ab$ e paralelo $B // ab$.

2- Magnetização em função do campo magnético aplicado (histerese) em temperatura constante

As análises de histerese magnética foram realizadas entre 0 e 50.000 Oe e em temperaturas de 10K, 70K e 100K. O campo magnético na maioria das vezes foi perpendicular à superfície dos filmes, $B \perp ab$.



Figura 4.8: Equipamento MPMS-XL da Quantum Design utilizado nas medidas.

3- Medidas elétricas

As medidas elétricas foram realizadas utilizando o mesmo equipamento utilizado nas medidas magnéticas (Magnetômetro SQUID). Porém, com um suporte adaptado específico para realização de medidas de transporte. Estas medidas foram realizadas utilizando uma das pontes da gravura da super-rede mostrada na Figura 4.5, com $25\mu\text{m}$ de largura. Uma camada de ouro era depositado para a melhor performance dos contatos. A avaliação do comportamento elétrico foi feito usando o Método das Quatro Pontas (VAN DER PAUW, 1958), consistindo de dois eletrodos aplicadores de corrente e dois eletrodos para a leitura de tensão. A fixação da amostra no suporte foi feita utilizando uma resina. Alguns detalhes podem ser visualizados na Figura 4.9.

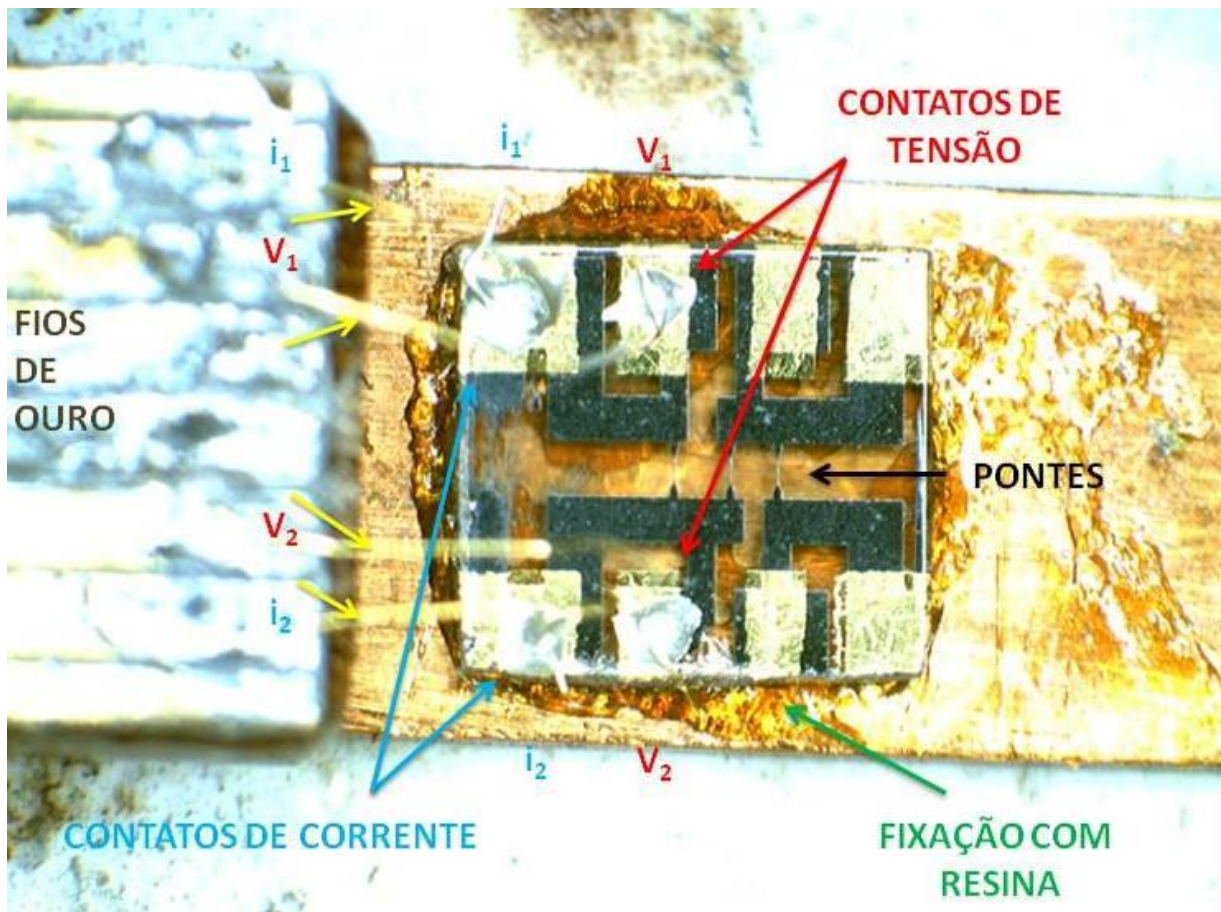


Figura 4.9: Posicionamento da amostra no suporte para medidas elétricas. V_1 e V_2 indicam os contatos de tensão e i_1 e i_2 os contatos de corrente.

O campo magnético, quando aplicado, foi orientado na direção paralela ao substrato, $B // ab$.

Também foram realizadas medidas de resistividade elétrica em função da temperatura e neste caso a faixa de temperatura testada foi entre 10 e 300K, utilizando uma corrente aplicada de $10\mu\text{A}$ e campo magnético de 50.000 Oe, quando aplicado. As medidas foram feitas ao longo do aquecimento. A resistividade foi avaliada a partir de valores de tensão lidos e dos parâmetros geométricos das amostras.

5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

5.1 Difração de raios X (DRX)

Nesse trabalho foi utilizado o difratômetro de raios X Rigaku DMAX-PC com radiação $K_{\alpha 1}$ do cobre de comprimento de onda de aproximadamente 1,5406Å gerada por tensão de 40kV e corrente de 20mA. As análises foram feitas na geometria $2\theta/\theta$ (varrendo os ângulos de reflexão e de incidência), no modo contínuo, usando passo de 0,050°, velocidade de 2°/min, e abertura de fenda de divergência de 5mm, ao longo do intervalo entre 3 e 100 graus. As medidas foram realizadas em temperatura ambiente (25°C).

Vale salientar que a orientação do substrato determina a orientação do filme. Por exemplo, o filme crescido em substrato de STO com orientação (100) tem crescimento na direção c . Enquanto que o substrato de STO com orientação (110) produz YBCO orientado predominantemente nesta mesma orientação (110).

Na sequência das figuras que serão mostradas o difratograma obtido para o substrato LAO será sempre apresentado abaixo dos resultados de cada grupo de super-redes de maneira a ser utilizado como um guia visual. Os seus picos de difração não estão indexados, porém estes são comparáveis àqueles encontrados por SHARMA *et al.* (2014), que indexa os de maior intensidade como picos da família (00ℓ) , além de observar a presença dos outros que também constam do difratograma dos nossos substratos, como ilustra a Figura 5.1.

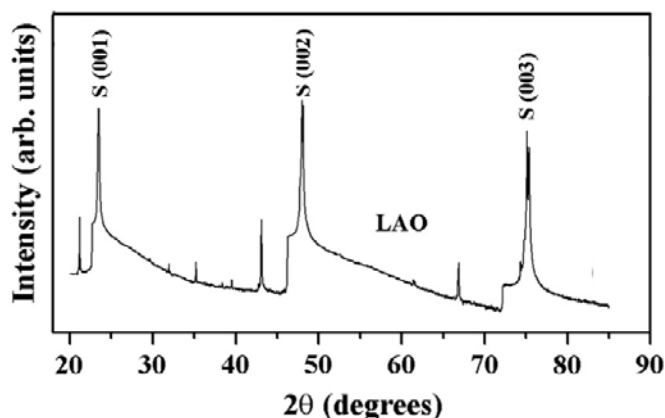


Figura 5.1: Difratoograma do substrato LAO com os picos da família (00ℓ) indexados. (SHARMA *et al.*, 2014)

Em todas as super-redes uma camada de aproximadamente 4nm de STO (*buffer*) foi depositada sobre o substrato para auxiliar o crescimento epitaxial das camadas depositadas posteriormente. (TIETZ *et al.*, 1989)

Nesta seção serão apresentados os difratogramas obtidos para todas as super-redes revelando a presença das fases YBCO e LCMO com alta cristalinidade. Este fato por si só é indicativo da integridade e da qualidade das camadas depositadas.

A presença da camada de STO, mesmo quando usada como isolante entre as camadas de YBCO e LCMO, não foi detectada por difração de raios X. O equipamento utilizado não possui monocromador ou outro dispositivo que realize estas análises com mais precisão. Novas medidas poderão ser feitas futuramente no Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS) para obter difratogramas com maior resolução.

As camadas dos outros isolantes também não foram detectados por estas medidas pela mesma razão citada no parágrafo anterior.

Nas Figuras 5.2 a 5.5, obtidas para todos os grupos de super-redes, os difratogramas constataram os picos da família (00ℓ) do YBCO e do LCMO.

O asterisco indica a posição onde poderia, ser observado a existência do STO (100) e (200) referente à camada *buffer*, caso não houvesse sobreposição com picos

do YBCO (003) e (006) e do LCMO (002) e (004). (HOPPLER *et al.*, 2008) (PRIJAMBOEDI *et al.*, 2006) (SOLTAN;ALBRECHT;HABERMEIER, 2004)

O pico visualizado próximo de $92,5^\circ$ não foi indexado devido à ausência de dados acima de 90° nas fichas encontradas. Porém, deve estar relacionado às camadas YBCO ou LCMO pois estão presentes em todos os difratogramas com exceção do realizado para o substrato.

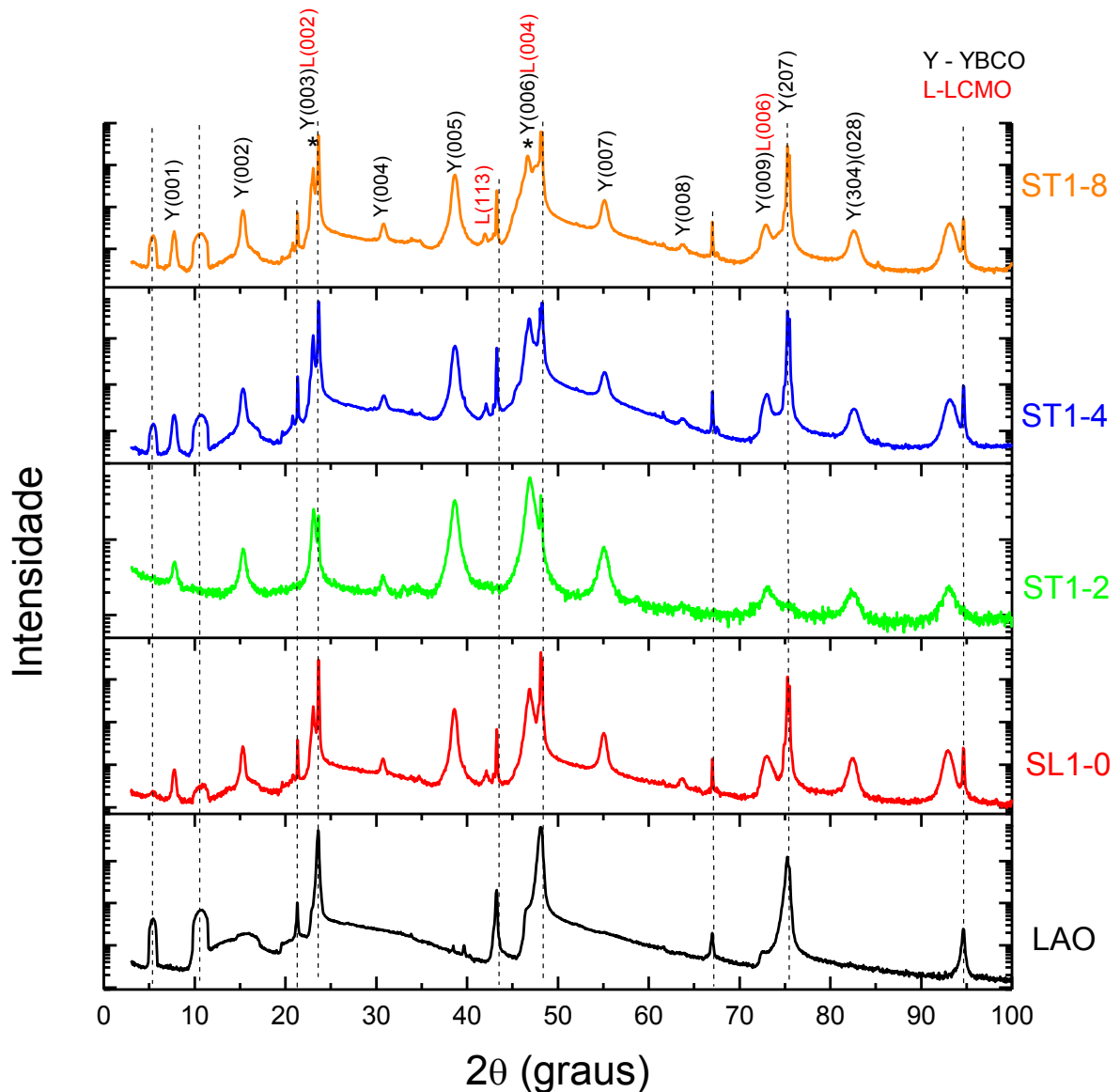


Figura 5.2: Difratogramas de raios X do primeiro conjunto de amostras ($\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{STO}_d/\text{LCMO}_{10\text{nm}}\text{)}_{\times 20}$, com espessuras de STO, d , iguais a 0, 2, 4 e 8 nm.

Os difratogramas do segundo conjunto de amostras (veja Figura 5.3), que diferem do primeiro conjunto apenas pela espessura da camada LCMO, a qual passou a ser igual à camada do YBCO (20nm), são praticamente idênticos aos primeiros.

Nestes difratogramas apenas um pico pode representar sobreposição de planos com orientações cristalográfica que não são da família (00ℓ) . É o pico posicionado em aproximadamente $82,5^\circ$, que pode se referir aos planos (304) e (028) do YBCO. Este pico está presente em todas as super-redes.

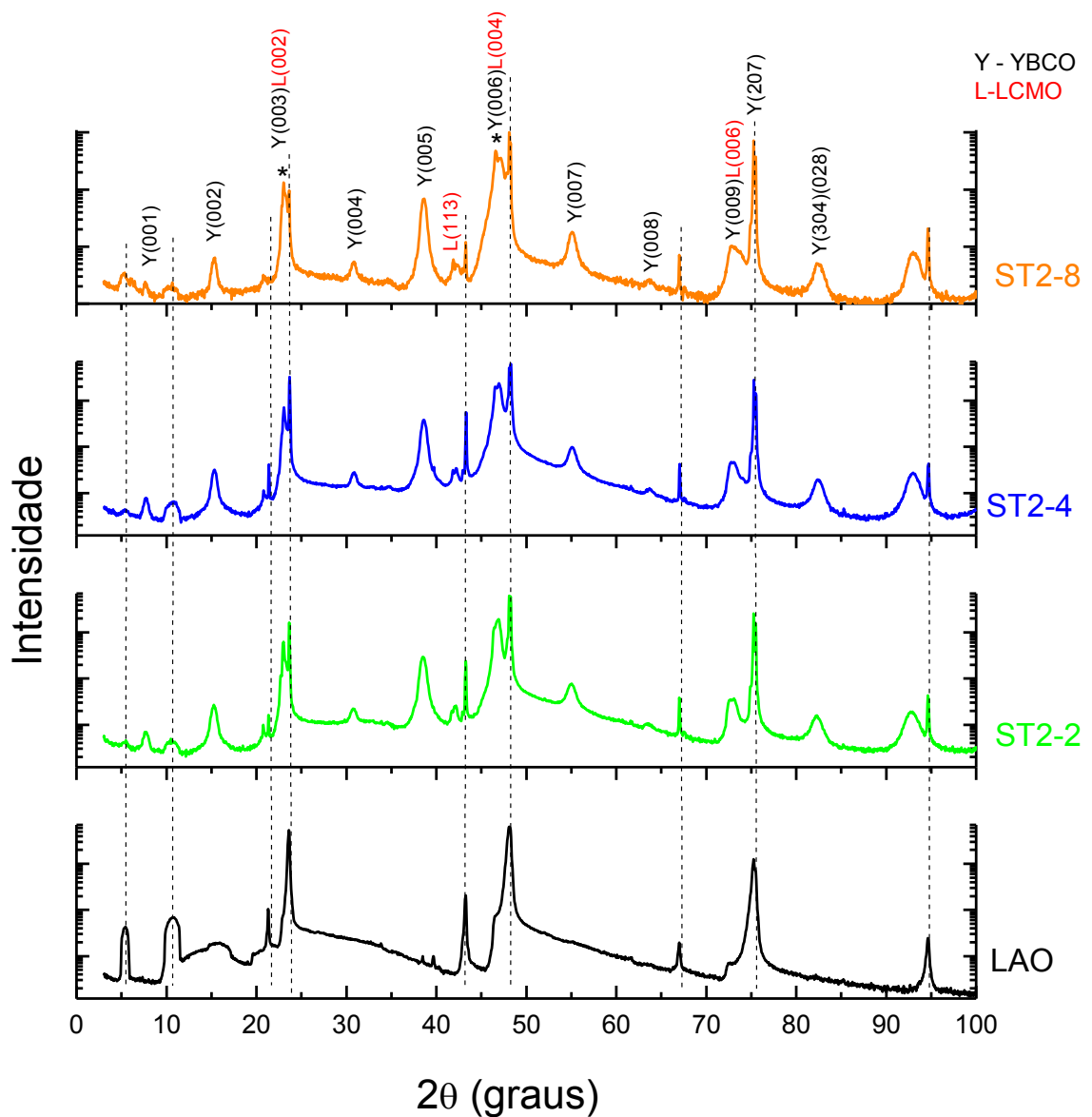


Figura 5.3: Difratogramas de raios X do segundo conjunto de amostras $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{STO}_d/\text{LCMO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$, com espessuras de STO, d , iguais a 2, 4 e 8nm.

A Figura 5.4 mostra, para o conjunto referente às super-redes com isolante CeO_2 , uma tendência que não é observada nos outros conjuntos estudados. A medida que aumenta a espessura do CeO_2 na super-rede, os picos (200) e (400) do CeO_2 aumentam de intensidade e diminuem de largura. Esta seria uma indicação de aumento da cristalinidade desta camada. Tanto a orientação do CeO_2 quanto a orientação do YBCO ou LCMO, continuam dentro dos padrões esperados.

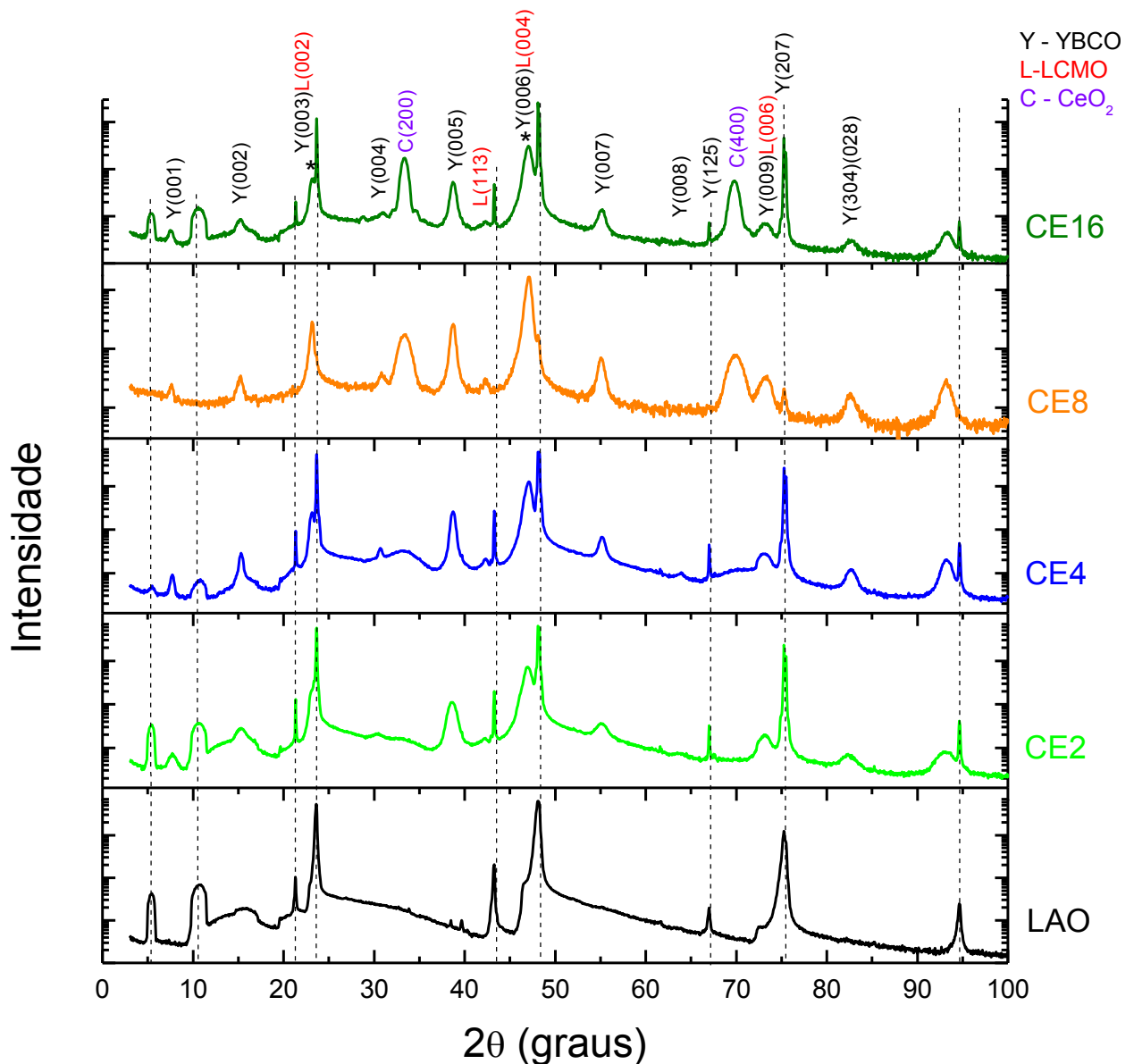


Figura 5.4: Difratogramas de raios X do terceiro conjunto de amostras $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{Ce}_d/\text{LCMO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$, com espessuras de CeO_2 , *d*, iguais a 2, 4, 8 e 16 nm.

Em relação às super-redes com camadas PBCO, a Figura 5.5 não indica mudança significativa em relação às outras super-redes. Assim como o STO, o PBCO possui parâmetro de rede muito próximo ao do YBCO e do LCMO, com incompatibilidade menor que 0,5%, o que permitiu o crescimento epitaxial de boa qualidade (MASILAMANI *et al.*, 2013) (ZHANG;WANG;ONG, 2000). Vale ressaltar que os picos referentes à família (00 l) do PBCO coincidem com os mesmos picos do YBCO.

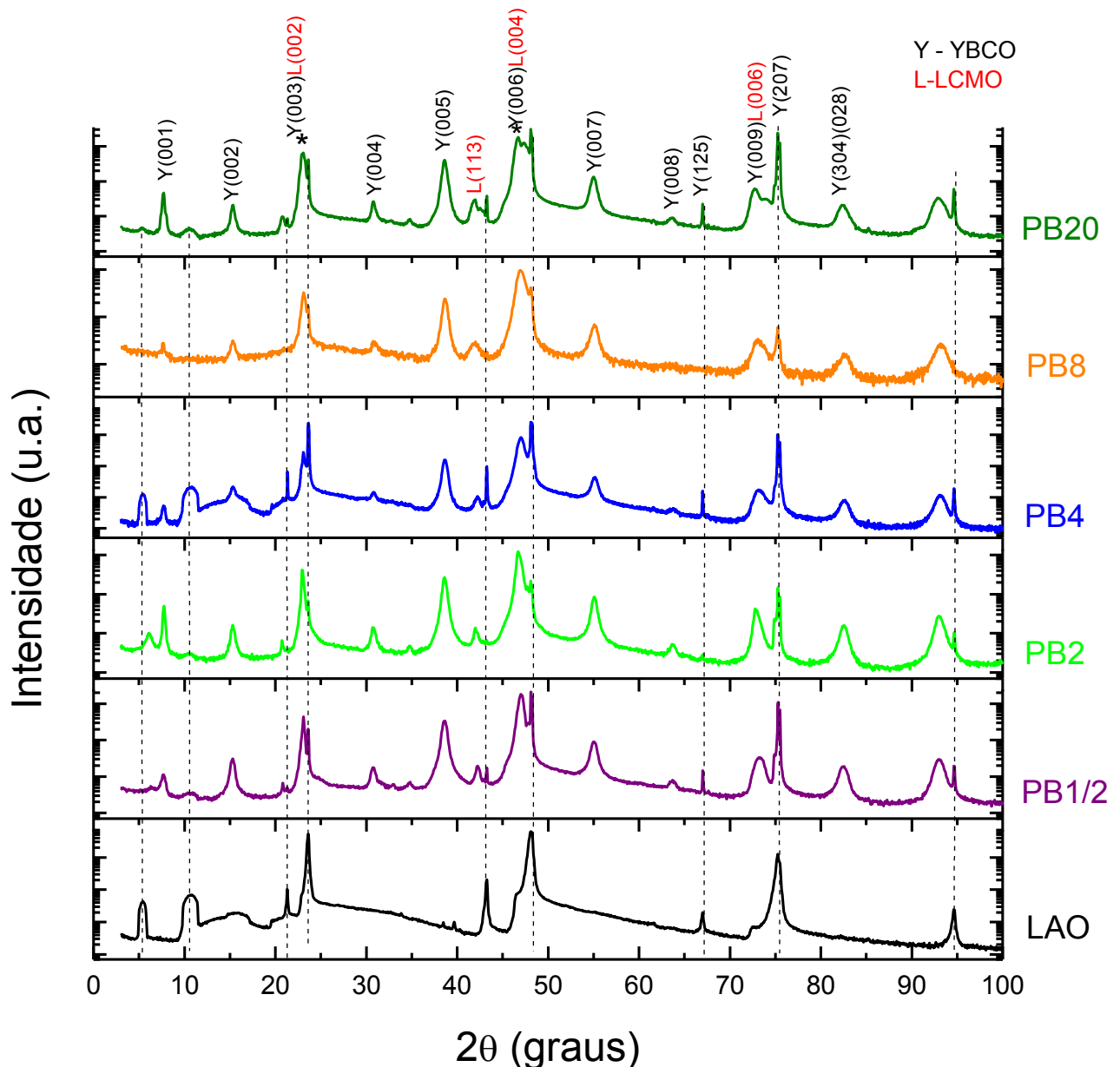


Figura 5.5: Difratogramas de raios X do quarto conjunto de amostras (YBCO_{20nm}/PB _{d} /LCMO_{20nm})_{x20}, com espessuras de PBCO, d , iguais a 0,5, 2, 4, 8 e 20nm.

Em todos os difratogramas apresentados foi possível observar que para as amostras com espessura de isolante igual ou maior a 8nm, os picos referentes ao substrato, que é observado de forma intensa em todos os difratogramas, diminui consideravelmente. Os picos indexados para YBCO e LCMO também sofreram leves alargamentos indicando alguma degradação da cristalinidade dos materiais à medida que a espessura aumenta.

Em nenhum dos difratogramas apresentados foi identificado picos referentes à fases secundárias dos inúmeros compostos utilizados. Lembrando que estas fases secundárias podem estar abaixo da capacidade de resolução caso ela ocorra apenas na região da interface das camadas.

Uma técnica indicada para análise mais completa das super-redes é a refletividade de nêutrons polarizada (URIBE-LAVERDE *et al.*, 2013) (HOPPLER, 2009) (DEEN *et al.*, 2006) (HOFFMANN *et al.*, 2005), a qual poderia detectar defeitos estruturais com alto grau de resolução.

Segundo DEVELOS-BAGARINAO *et al.* (2005), através de difração de raios X é possível verificar fases secundárias decorrentes de produtos de reação entre o YBCO e o CeO_2 , e o YBCO e a safira, onde neste caso o CeO_2 é utilizado como *buffer* e a safira é o substrato, como ilustra a Figura 5.6. Esta figura indica os compostos que são considerados como fases secundárias conjuntamente com a orientação cristalográfica que ela se encontra. A presença do composto BaY_2O_4 é atribuído a não estequiometria do filme que é levemente rico em ítrio, onde este composto é o responsável por quebrar a continuidade do filme de YBCO, causando a formação de poros.

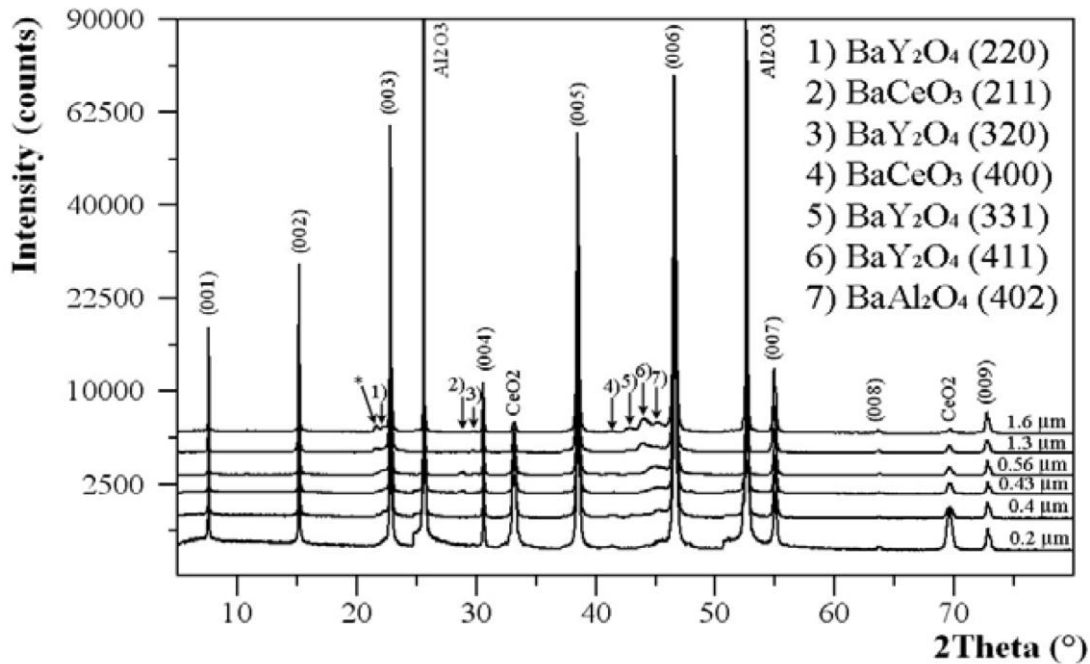


Figura 5.6: Difratoogramas de raios X de camadas com diferentes espessuras. Os picos de YBCO estão anexados e indicam predominância da orientação *c*. A medida que a espessura da camada aumenta, picos de fases secundárias como BaCeO₃, BaAl₂O₄ e BaY₂O₄ tornam-se mais proeminentes. (DEVELOP-BAGARINAO *et al.*, 2005)

5.2. Microscopia Eletrônica de Varredura – MEV

Micrografias das superfícies e das seções transversais das super-redes com 8nm de espessura de isolante foram obtidas com a finalidade de comprovar as estruturas e compará-las segundo os diferentes isolantes utilizados. As amostras SL1-0 e SL2-0 também foram visualizadas a fim de tê-las como referência de estruturas de camadas de YBCO e LCMO sem isolante entre eles. Para obtenção das imagens da superfície, cada super-rede foi fixada no suporte com tinta prata.

O LCMO é a camada que fica na superfície (no topo) de todas as super-redes deste trabalho, logo a análise é feita a partir de sua microestrutura.

As imagens revelam que a técnica de PLD produz camadas granuladas formadas do empilhamento de grãos dos materiais. A textura e a rugosidade da superfície de cada super-rede é diferenciada, e é resultado da influência da estrutura cristalina do isolante usado no seu crescimento. Segundo MASILAMANI *et al.* (2013), o STO é selecionado como o melhor material para a camada *buffer*, pois tem grande estabilidade química e maior compatibilidade de parâmetro de rede, o que

resulta em filmes finos de YBCO de alta qualidade. Ainda sobre a técnica PLD, a qualidade do filme é dependente de vários parâmetros, como a distância do alvo e do substrato, a pressão de oxigênio, a energia do laser, etc. Em algumas micrografias da superfície mostradas a seguir é possível observar algumas partículas incrustadas na superfície, que se originam do alvo, embora o procedimento de deposição utilizado tenha tido seus parâmetros otimizados. (PYSARENKO; PAN; DOU, 2011) (PAN *et al.*, 2007) (MASILAMANI *et al.*, 2013)

A Figura 5.7 mostra que as microestruturas das superfícies das amostras SL1-0 e SL2-0, com configurações $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{LCMO}_{10\text{nm}})_{\times 20}$ e $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{LCMO}_{20\text{nm}})_{\times 20}$, respectivamente, são bastante semelhantes indicando não existir dependência aparente sobre a espessura da camada de LCMO para estas espessuras. As micrografias foram obtidas em equipamentos diferentes, porém, a distribuição de tamanhos e forma dos grãos, além dos defeitos decorrentes do crescimento através da técnica PLD, são praticamente idênticos sob este nível de ampliação.

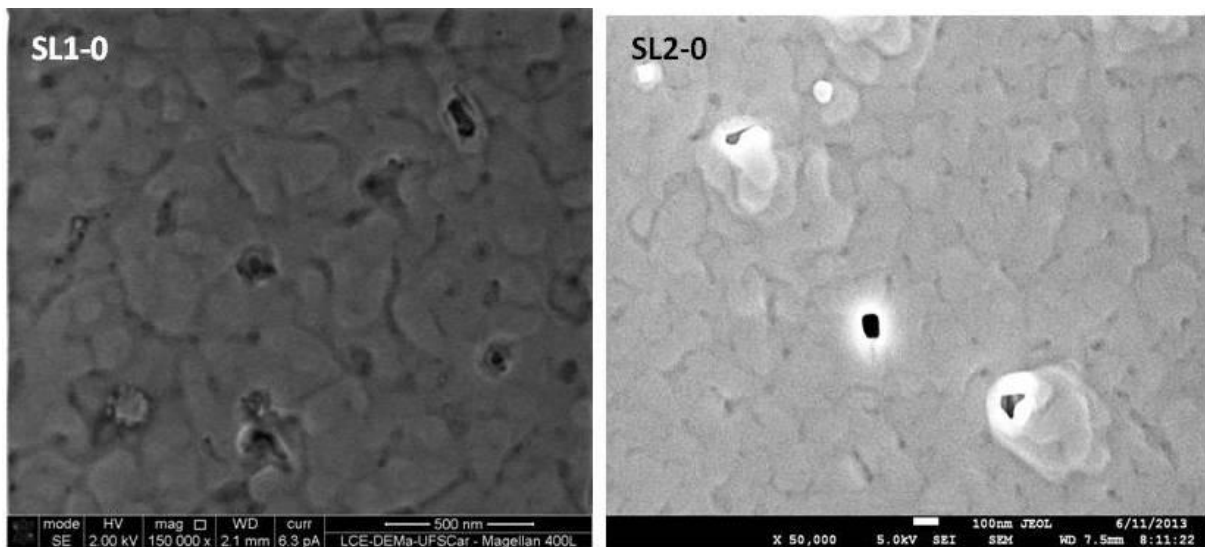


Figura 5.7: MEV das superfícies das super-redes preparadas sem camada isolante. Barras de escala correspondem a 500nm (SL1-0) e a 100nm (SL2-0) e a ampliação é de 150k e 50k vezes, respectivamente.

As Figuras 5.8 e 5.9 possibilitam a comparação entre as superfícies das super-redes que não possuem e as que possuem diferentes isolantes entre as camadas YBCO e LCMO. A análise das micrografias revela diferentes formas e tamanhos de grãos e diferentes graus de porosidade nas superfícies. A amostra com camada de CeO_2 (CE8) apresenta alta porosidade e uma microestrutura mais grossa formada de grãos semi-micrométricos na forma de gotas sobrepostas. As microestruturas das superfícies do ST8 e do PB8 são as mais finas e apresentam até mesmo menor porosidade que as superfícies das super-redes de referência, SL0-1 e SL0-2.

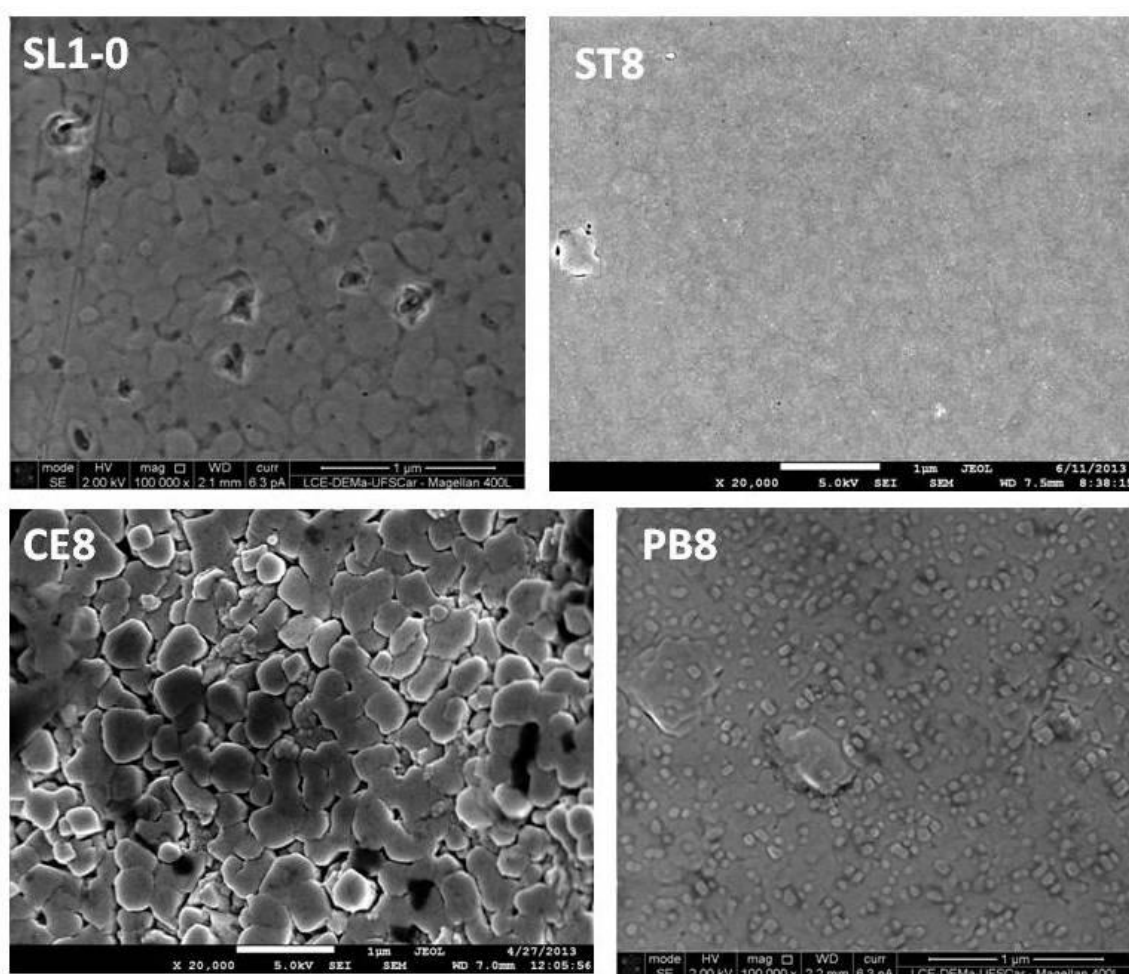


Figura 5.8: MEV das superfícies das super-redes preparadas com camada de 8nm de diferentes isolantes. Barras de escala correspondem a 1 μ m e a ampliação é de 20 a 100k vezes.

Por meio das micrografias de maior ampliação foi possível estimar os tamanhos dos grãos presentes nas microestruturas. Estes são cerca de 30nm, 400nm e 120nm para as amostras ST8, CE8 e PB8 respectivamente (estimados pela

barra de escala). O tamanho dos grãos das amostras SL0-1 e SL2-0 é de difícil avaliação uma vez que estes se encontram interligados formando um mosaico de cadeias de LCMO resultante do crescimento colunar da camada. (FEDOSEEV *et al.*, 2013)

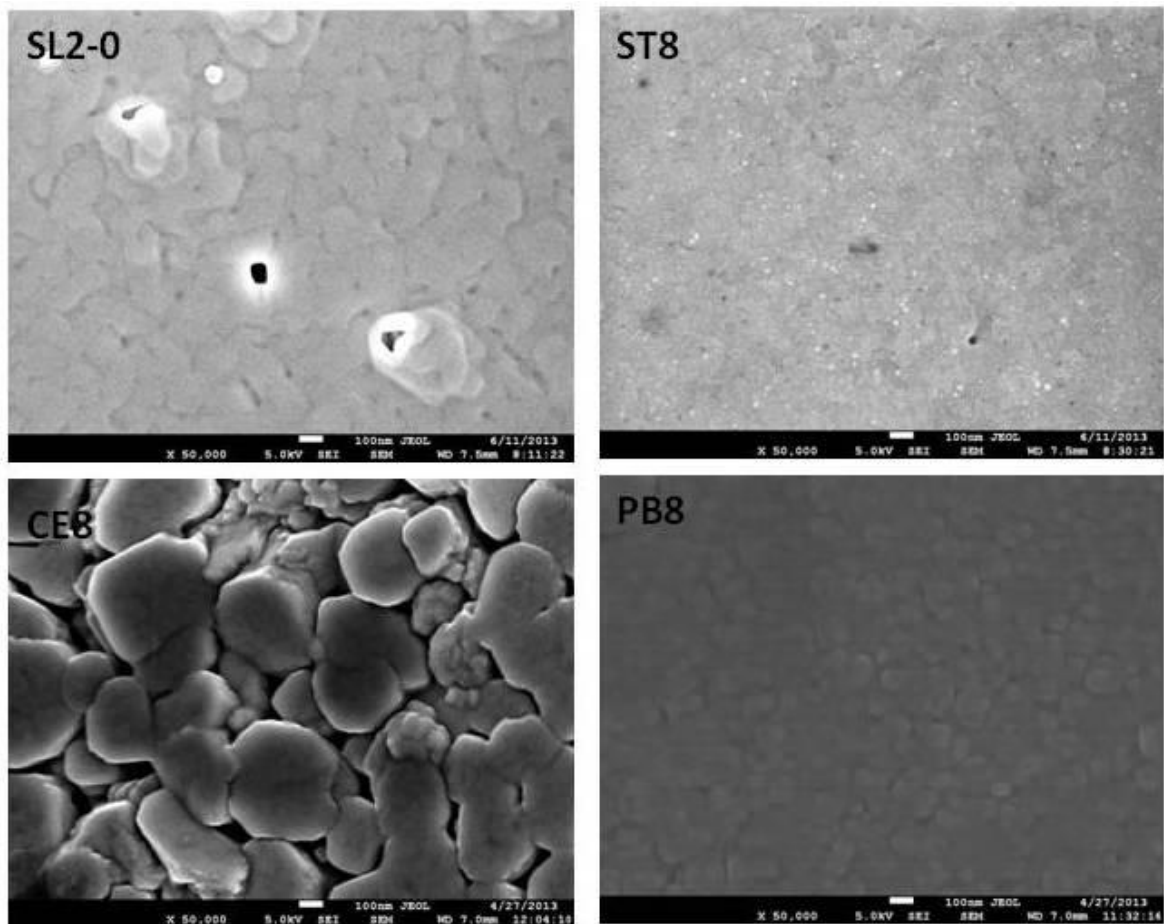


Figura 5.9: MEV das superfícies das super-redes preparadas com camada de 8nm de espessura de diferentes isolantes. Barras de escala correspondem a 100nm e a ampliação é de 50k vezes.

As imagens das superfícies revelam que para cada material constituinte da camada isolante obtém-se uma textura diferente de LCMO. O STO possui alta compatibilidade de estrutura cristalina e de parâmetro de rede com as camadas YBCO e LCMO, o que resulta em camadas destes materiais com menos defeitos e maior planicidade de superfície. Ou seja, menos sinais de crescimento colunar e mais evidência de crescimento planar. O PBCO, possui também certa compatibilidade estrutural, porém apresenta quantidade razoável de crescimento de

cristais para fora da superfície que parecem ter certa periodicidade em direção preferencial. A discordância entre as estruturas cristalinas parece ser bem definida.

As Figuras 5.10, 5.12 e 5.13 mostram as seções transversais das super-redes preparadas sem camada isolante (SL1-0) e com 8nm de cada um dos tipos de isolante. As imagens confirmam a existência das super-redes feitas de camadas bem definidas, apesar da existência de defeitos intrínsecos do método de deposição e outros comentados a seguir. A camada mais clara é identificada com o filme YBCO e a camada escura com o LCMO.

A amostra ST8 apresenta pequenos buracos entre as camadas que podem estar relacionados aos parâmetros de deposição, tais como vácuo ou distância entre substrato e alvo. Os parâmetros de deposição foram os mesmos para todas as super-redes e podem não ter sido o melhor para este caso.

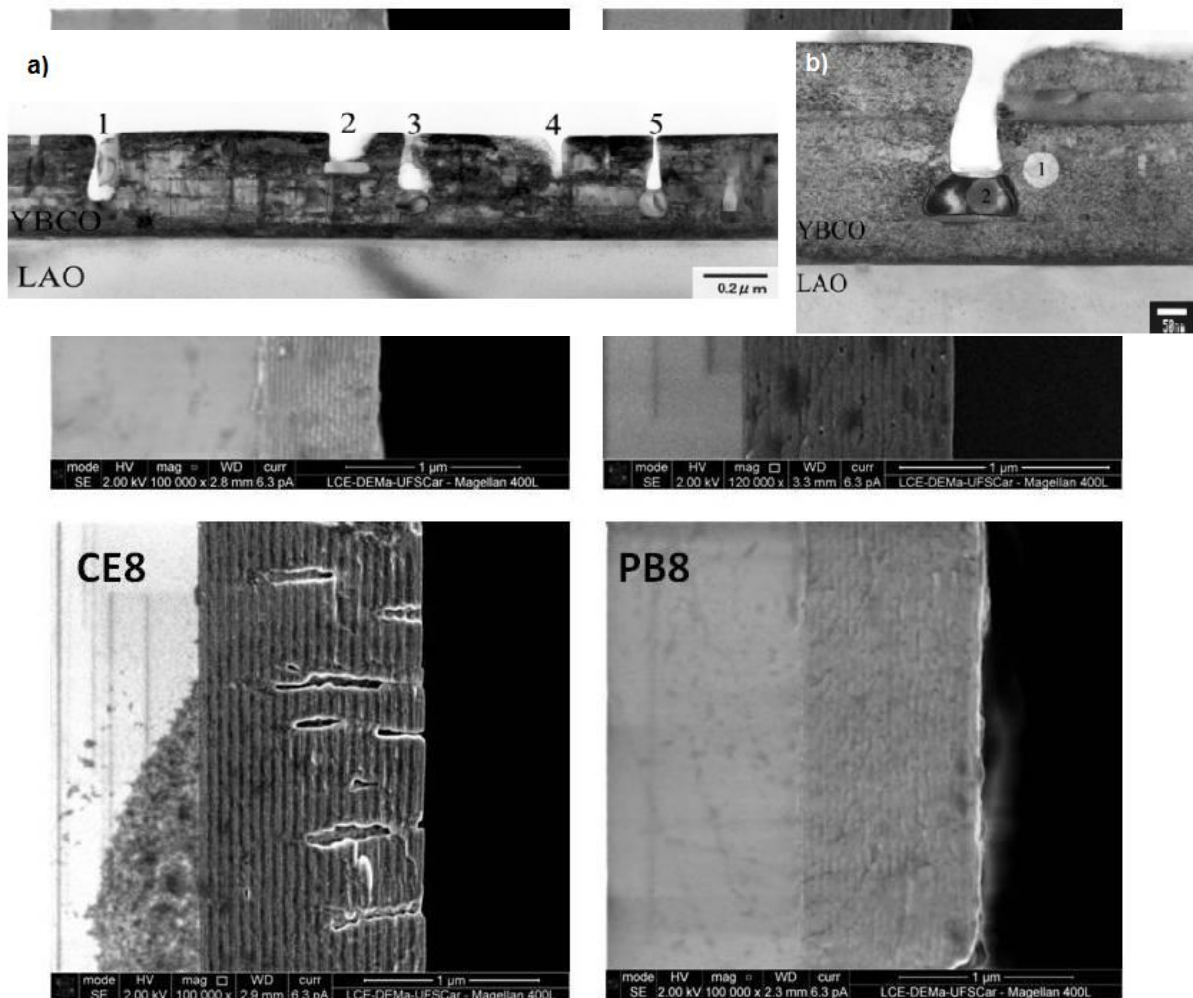
O comportamento mais incomum foi o observado na amostra CE8, onde a partir da metade da super-rede iniciam-se defeitos que se estendem até a superfície. Este fato é atribuído a incompatibilidade da estrutura do CeO_2 com o YBCO (MASILAMANI *et al.*, 2013). Bons resultados são obtidos quando este material é utilizado como *buffer* em substratos como Ni-W, safira e silício. (LIU *et al.*, 2011)(DEVELO-S-BAGARINAO;YAMASAKI, 2009)(PAN *et al.*, 2003)(WU *et al.*, 1991)

Talvez tais defeitos pudessem ser minimizados, caso fossem depositadas 10 repetições e não 20, como é o caso das super-redes deste trabalho. No entanto, não se sabe se os resultados das caracterizações magnéticas e elétricas seriam os mesmos obtidos para estas super-redes com mínimos defeitos.

No trabalho de DEVELO-S-BAGARINAO *et al.* (2004), os filmes finos de YBCO são crescidos pela técnica PLD, com alvo de YBCO não estequiométrico rico em Ba e Cu. Em função disto, o filme apresenta várias fases secundárias, entre elas o BaY_2O_4 , que segundo o autor, é responsável pelos defeitos estruturais, indicados como (1), (2), (3), (4) e (5) na Figura 5.12(a). A Figura 5.11(b) fornece uma visão ampliada de um destes defeitos, onde a parte mais escura indicada como (2) seria o BaY_2O_4 , e a parte mais clara indicada como (1) seria a matriz do YBCO. Em nosso trabalho é pouco provável que os defeitos sejam provenientes de fases secundárias.

Mas podem ser devido a tensão causada pela pequena diferença dos parâmetros de rede. (MASILAMANI *et al.*, 2013)

Figura 5.10: MEV da seção transversal das super-redes com 8nm de espessura de cada isolante e a



super-rede referência (SL1-0). Barra de escala de 1 μm e ampliação de ~100k vezes.

Figura 5.11: Micrografia de transmissão da seção transversal do (a) filme de YBCO, com poros microestruturais indicados de (1) a (5). (b) Poro microestrutural com área analisada pertencente (1) à matriz YBCO e (2) à fase secundária. (DEVELO-S-BAGARINAO *et al.*, 2004)

A Figura 5.12 mostra, ainda com maior ampliação, a interface entre o substrato e a super-rede. Apesar da pouca nitidez é possível observar que as camadas possuem interfaces bem definidas indicando crescimento homogêneo e sequenciamento correto dos filmes até a superfície.

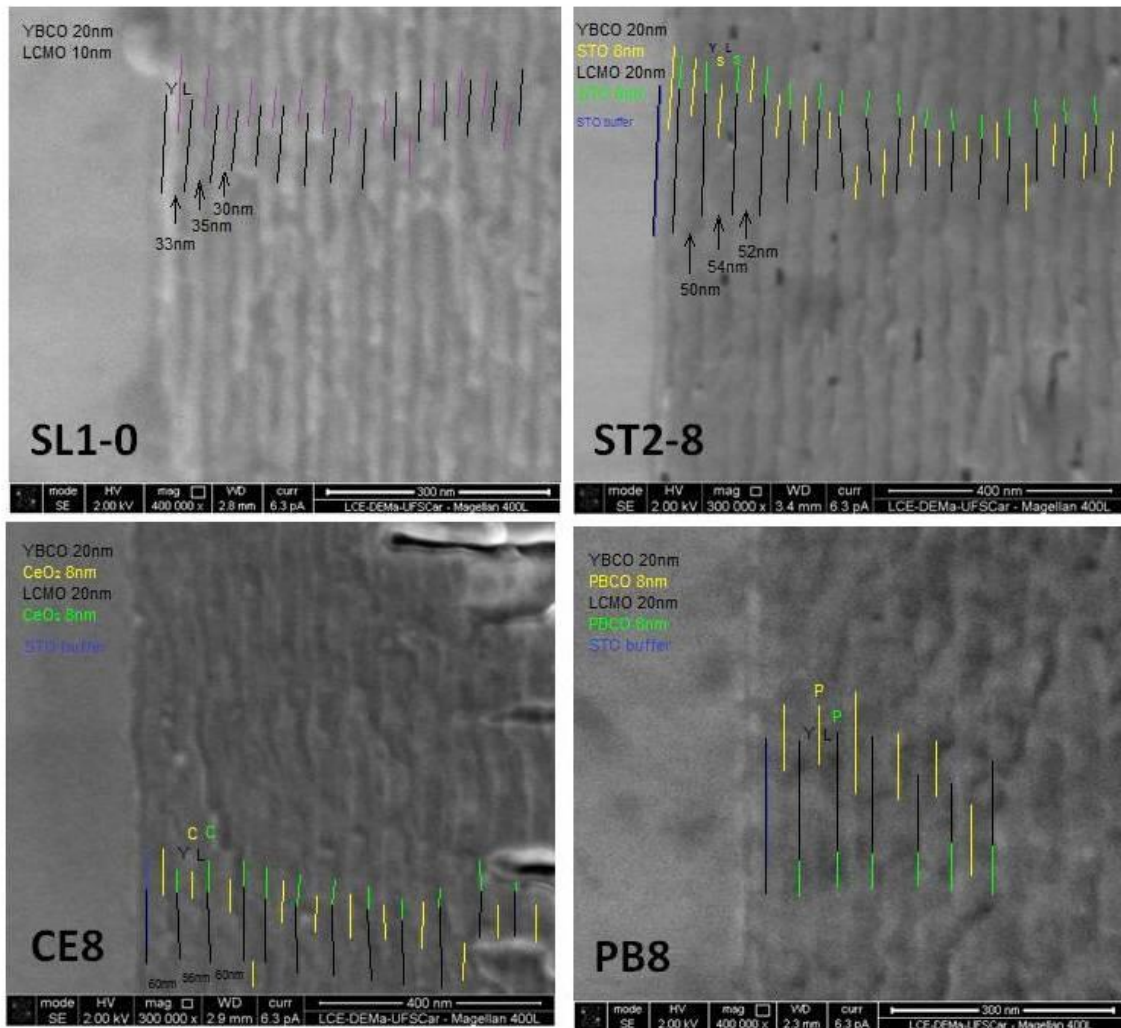


Figura 5.12: MEV da seção transversal das super-redes com 8nm de espessura de cada isolante e a super-rede referência (SL1-0). Barra de escala de 300nm e 400nm e ampliação de aprox. 400k e 300k vezes, respectivamente. Linhas são guias indicando os limites de cada camada.

Para os casos das amostras CE8 e PB8 foram realizadas análises de energia dispersiva de raios X (*Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* – EDS) que são apresentadas nas Figuras 5.13 e 5.14, respectivamente. A área de análise é indicada pelo retângulo verde. Todos os elementos constituintes da super-rede foram detectados, justicado pela profundidade de penetração do feixe que alcança diversas camadas. A alta porcentagem de oxigênio é justificável por todos os compostos óxidos presentes. O carbono esteve presente devido a contaminação da superfície.

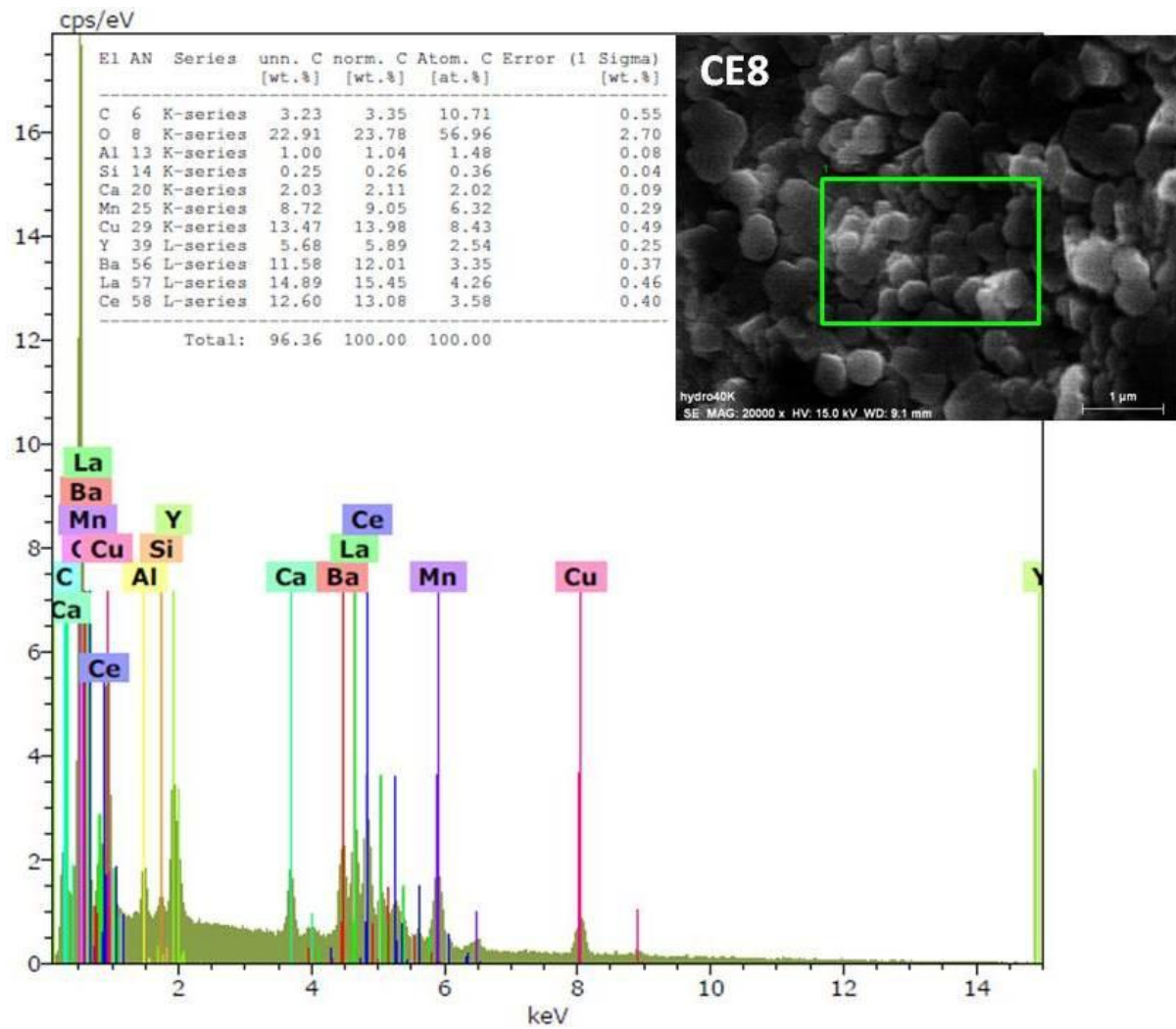


Figura 5.13: EDS da área da superfície da super-rede CE8 indicada em verde. O percentual atômico e de massa de cada elemento estão indicados, porém não foi feita calibração que permitisse o cálculo confiável destas proporções.

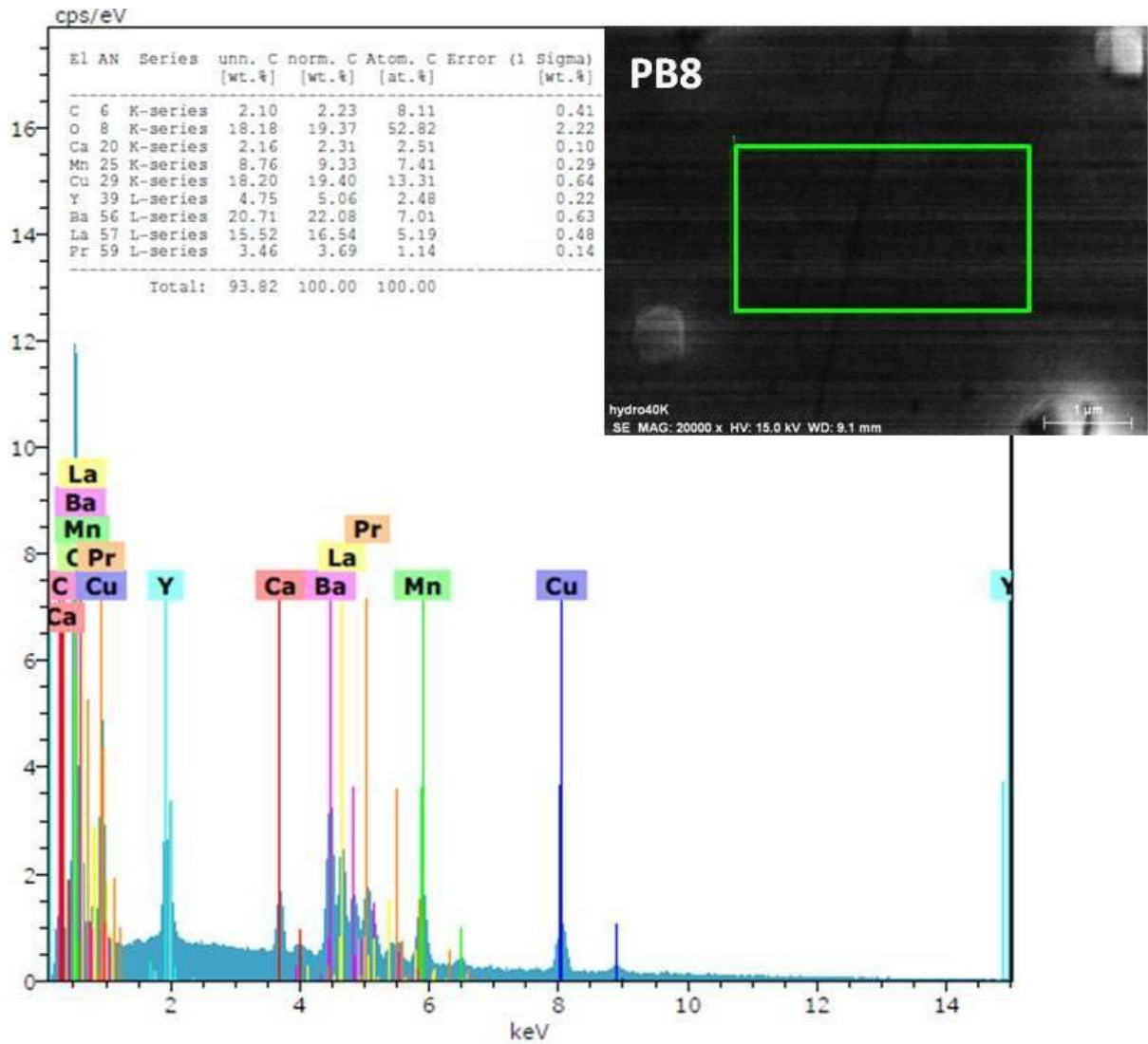


Figura 5.14: EDS da área da superfície da super-rede PB8 indicada em verde. O percentual atômico e de massa de cada elemento estão indicados, porém não foi feita calibração que permitisse o cálculo confiável destas proporções.

5.3. Medidas Magnéticas

No início deste estudo foram preparadas super-redes com a camada do supercondutor YBCO ($d_S = 20\text{nm}$) mais espessa que a camada do ferromagneto LCMO ($d_F = 10\text{nm}$), separadas por camada de STO de variadas espessuras. As medidas feitas para estas amostras indicaram um comportamento predominante de supercondutor.

Em vista destes resultados, passou-se a confeccionar super-redes com proporção equilibrada de supercondutor e ferromagneto ($d_S = d_F = 20\text{nm}$). A partir de então foram observados efeitos diferenciados, que surgiram em função da intensidade e da direção do campo magnético aplicado.

Dentro da arquitetura $(\text{YBCO}_{d_S}/\text{ISOLANTE}_{d_I}/\text{LCMO}_{d_F})_{20}$, foram inseridos três isolantes: SrTiO_3 , CeO_2 e $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$. Cada isolante constituiu um conjunto de amostras tendo camadas basicamente com as espessuras 2, 4 e 8nm. Camadas com espessuras de 16 e 20nm também foram testadas em dois casos. Preparou-se também super-redes sem camada isolante a fim de tomá-las como referência.

As observações feitas neste estudo, tais como a dependência do acoplamento YBCO/LCMO na espessura de qualquer dos isolantes são novos na literatura.

5.3.1 Super-redes $(\text{YBCO}_{d_S}/\text{STO}_{d_I}/\text{LCMO}_{d_F})_{x20}$ com $d_S = 20\text{nm}$ e $d_F = 10\text{nm}$

Os dados obtidos para este conjunto comprovam que quando a super-rede é de arquitetura baseada em camada de ferromagneto tendo metade da espessura da camada de supercondutor, o comportamento magnético da super-rede é modulado pelo supercondutor, resultando na supressão ou encobrimento do comportamento ferromagnético mesmo quando as medidas são realizadas após resfriamento sob campo magnético aplicado (FC). O início da transição supercondutora (T_C) dá origem à modulação gigante (*giant modulation*) no ferromagneto, o que envolve a mudança da sua densidade na magnetização ao invés da sua direção (HOPPLER *et al.*, 2009).

Nas Figuras 5.15 e 5.16 comprova-se o comportamento diamagnético que define a temperatura crítica T_C , característica da transição supercondutora para ambos os procedimentos FC e ZFC. O procedimento FC, entretanto, apresentou magnetização muito abaixo do ZFC. O qual também foi bastante abaixo do esperado para um material ferromagnético. As Figuras 2.13 e 2.14, do Capítulo 2, mostram o comportamento ferromagnético encontrado no caso de *bi-layer* do tipo YBCO/LCMO onde T_{Curie} é aproximadamente 229K. (SOLTAN, 2005)

Apesar de modulado pelo supercondutor, ainda é possível observar em diversos momentos a influência da camada ferromagnética. Por exemplo, na Tabela 5.1 esta influência é visível pelo crescimento sistemático de T_C com o acréscimo gradual da espessura do isolante, indicando o crescente desacoplamento das camadas YBCO e LCMO. Além disso, as curvas de magnetização na região logo acima de T_C , mostrada na Figura 5.16, mostram elevações que são tanto maiores quanto menor à espessura do isolante – observado para ZFC e FC.

Importantes observações devem ser feitas com relação às características da amostra SL1-0, a qual toma-se como referência de super-rede com acoplamento máximo. Nesta super-rede a transição ocorre abaixo da transição da amostra com 4nm de isolante e sua magnetização acima de T_C é a maior entre as amostras. Entretanto, nem mesmo para esta amostra observa-se um comportamento de ferromagneto de maneira a poder localizar a temperatura de Curie pois a curva se eleva desde 300K.

Tabela 5.1: Valores das temperaturas críticas do primeiro conjunto.

ST1	Tc (K)
SL1-0	84
ST1-2	86
ST1-4	88
ST1-8	88

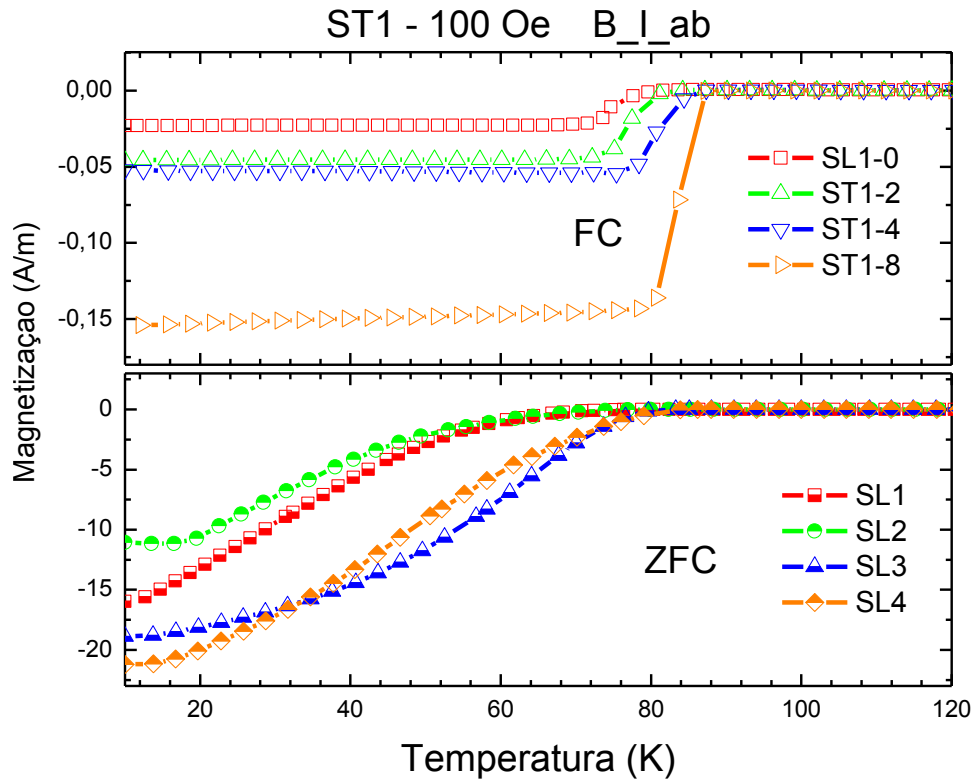


Figura 5.15: Curvas de magnetização ZFC e FC com campo magnético de 100 Oe aplicado perpendicular à superfície das super-redes.

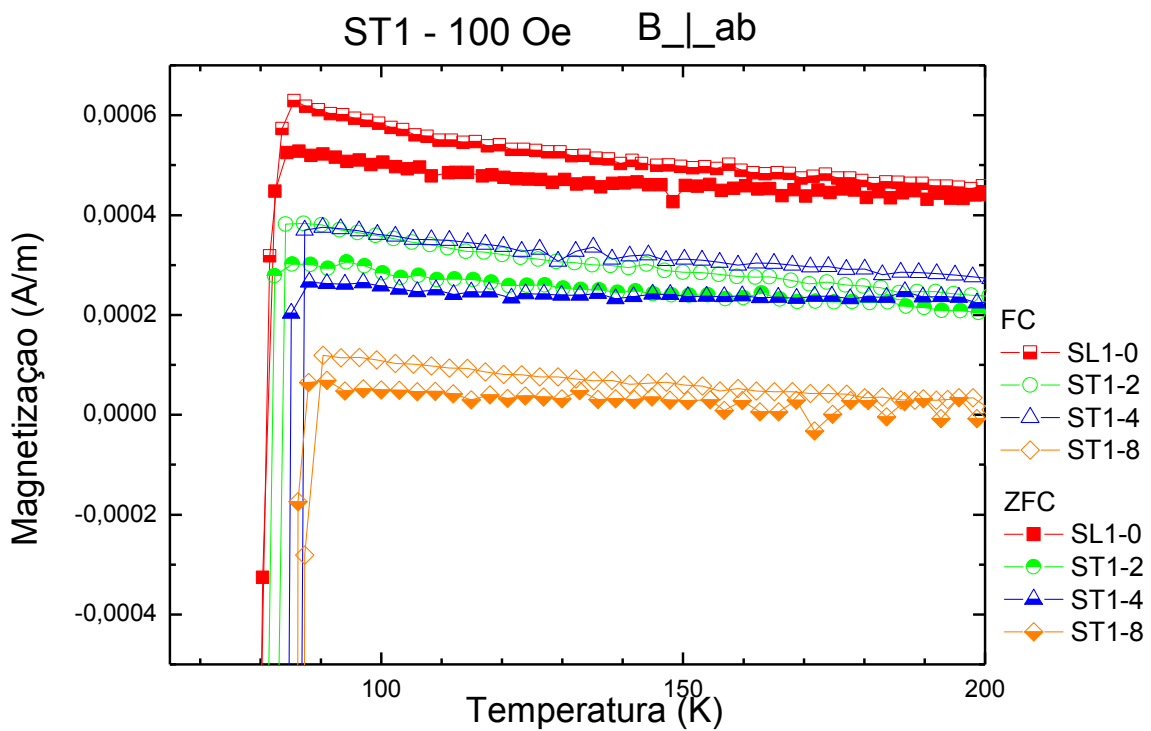


Figura 5.16: Curvas de magnetização ZFC e FC com campo magnético de 100 Oe aplicado perpendicular à superfície das super-redes, na região de T_c até 200K.

5.3.2 Super-redes (YBCO_{ds}/STO_{dl}/LCMO_{dF})_{x20} com d_S = 20nm e d_F = 20nm

Este segundo conjunto de super-redes tem características diferentes das anteriores pois as camadas de YBCO e LCMO são de mesma espessura. Suas curvas ZFC, mostradas na Figura 5.17, são mais afetadas pelo LCMO e, por esta razão, T_c fica um pouco abaixo do conjunto anterior (Tabela 5.2). Por outro lado, estes valores de T_c ainda estão acima de valores encontrados na literatura, tal como os obtidos por DRIZA *et al.* (2012), onde T_c é 45K e 60K nas super-redes (YBCO_(10nm)/LCMO_(10nm))_{x15} e (YBCO_(20nm)/LCMO_(10nm))_{x10}, respectivamente. Neste grupo, semelhante ao anterior, as temperaturas críticas são mais altas nas amostras com espessura de STO maior.

Ainda na Figura 5.17 as medidas FC apresentam um comportamento paramagnético que surge exatamente a partir da temperatura crítica do material que é identificado como PME – *Paramagnetic Meissner Effect*. Nos supercondutores de alta temperatura (HTS), este efeito pode descrever a existência do estado não convencional de pareamento de *d-wave*, permitindo o aparecimento de super correntes espontâneas no supercondutor devido a presença de bandas π . Estas bandas π são responsáveis pelo efeito paramagnético contribuindo para sua susceptibilidade (MÓRAN *et al.*, 2008). Este fenômeno é mostrado mais claramente para a amostra ST2-2 na Figura 5.18, porém todas deste conjunto o apresentaram.

Tabela 5.2: Valores de T_c (ZFC) e T_{Curie} (FC) do 1° e 2° conjuntos de super-redes com isolante STO.

ST1	T _c (K)	ST2	T _c (K)	T _{Curie} (K)
SL1-0	84	SL2-0	83	238
ST1-2	86	ST2-2	80	228
ST1-4	88	ST2-4	83	228*
ST1-8	88	ST2-8	83	223

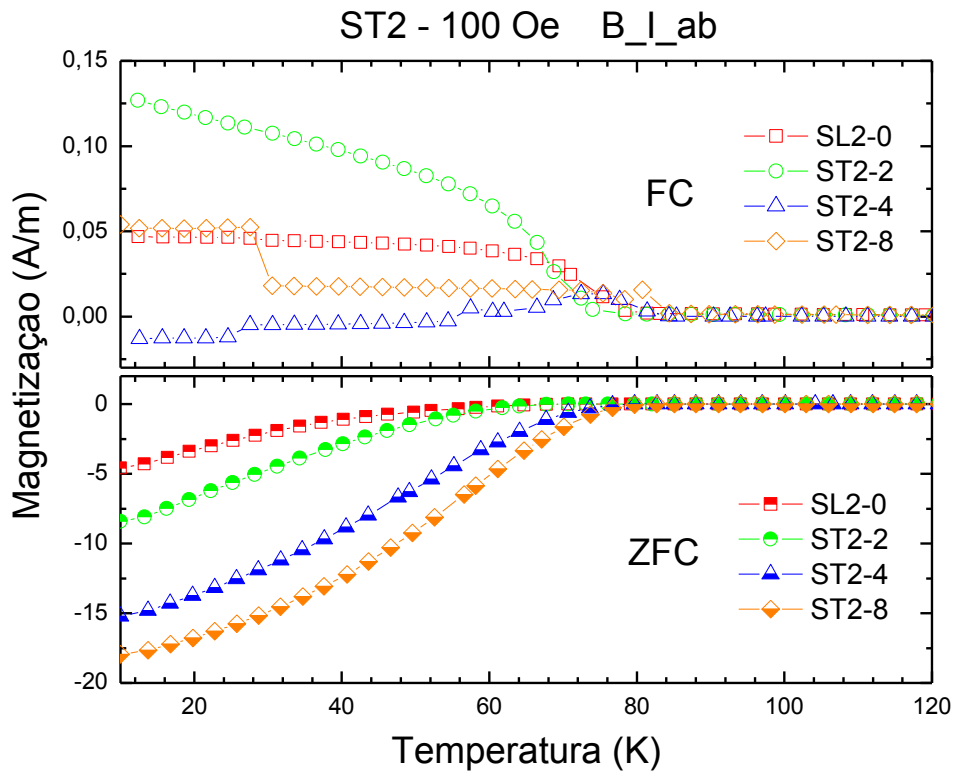


Figura 5.17: Curvas de magnetização ZFC e FC com campo magnético de 100 Oe aplicado perpendicular à superfície dos filmes.

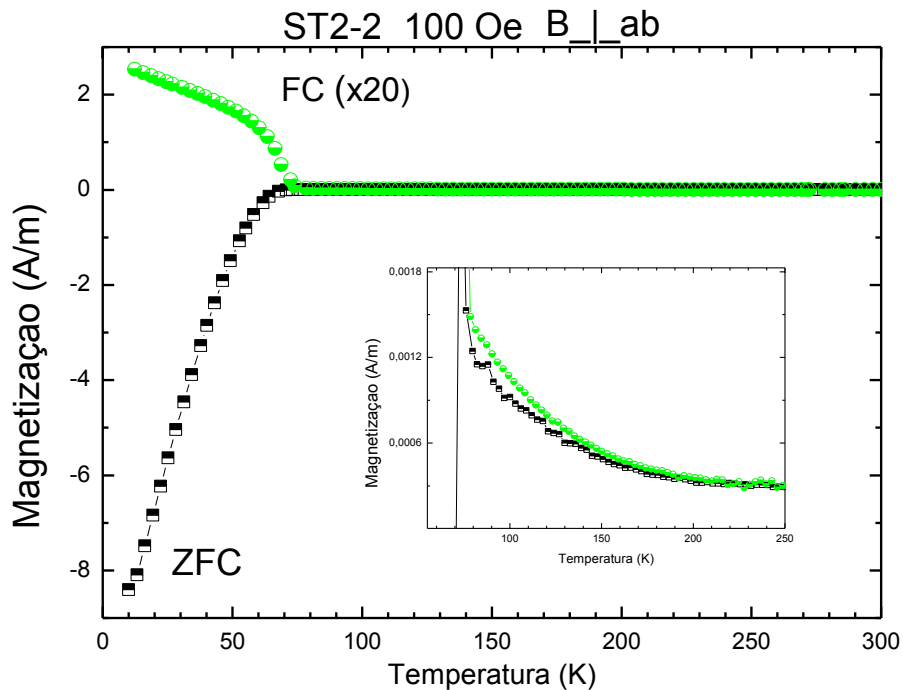


Figura 5.18: Curvas de magnetização (ZFC e FC) da super-rede ST2-2 mostrando o efeito PME. Curva FC foi multiplicada por 20 para melhor visualização. (Inserção: comportamento das curvas ZFC e FC na região de T_c , valores FC não multiplicados).

Uma das super-redes, a ST2-4, apresentou um comportamento diferenciado no procedimento FC apesar de ter a mesma tendência no ponto T_C . Sua curva mostrou comportamento diamagnético abaixo de aproximadamente 57K. Na curva ZFC esta amostra também apresenta uma região de ordenamento ferromagnético entre 228 e 88K, antes de passar para o estado supercondutor em 83K. Não foi possível explicar o comportamento instável desta amostra, mas este pode ser atribuído a uma competição entre os parâmetros de ordem do supercondutor e do ferromagneto.

Nas curvas FC destas amostras foi possível visualizar a temperatura de ordenamento magnético, T_{Curie} , que ficou em 223-228K (Tabela 5.2). A amostra sem camada isolante, SL2-0, mostrou a transição próximo de 240K, mais alta que as outras. Este valor está possivelmente atribuído pelo alargamento da espessura efetiva do LCMO, devido ao avanço (injeção) das quasi-partículas spin-polarizadas para dentro da camada supercondutora (GRAY, 1981) (PARKER, 1975) (YEH *et al.*, 1999).

De acordo com Werner *et al.* (2010), para amostras volumétricas de LCMO T_{Curie} é 260K, mas esta sofre queda à medida que as dimensões do material são reduzidas. Os filmes finos de LCMO produzidos pelo autor apresentam valores de T_{Curie} de 235K e 166K, respectivamente para amostras com espessuras de 100nm e 50nm.

Segundo SOLTAN *et al.* (2005), para tri-layer do tipo LCMO_{50nm}/STO_{5nm}/YBCO_{100nm}, sua T_{Curie} é de 245K, como mostra a Figura 5.20.

Quanto à orientação do campo aplicado para o qual foram obtidos os valores T_{Curie} , segundo MORÁN *et al.* (2008), a determinação deste ponto não depende da direção do campo aplicado no procedimento FC. A Figura 2.26 (Capítulo 2) exemplifica este fato para uma tri-layer FM_{78nm}/SC_{77nm}/FM_{78nm}.

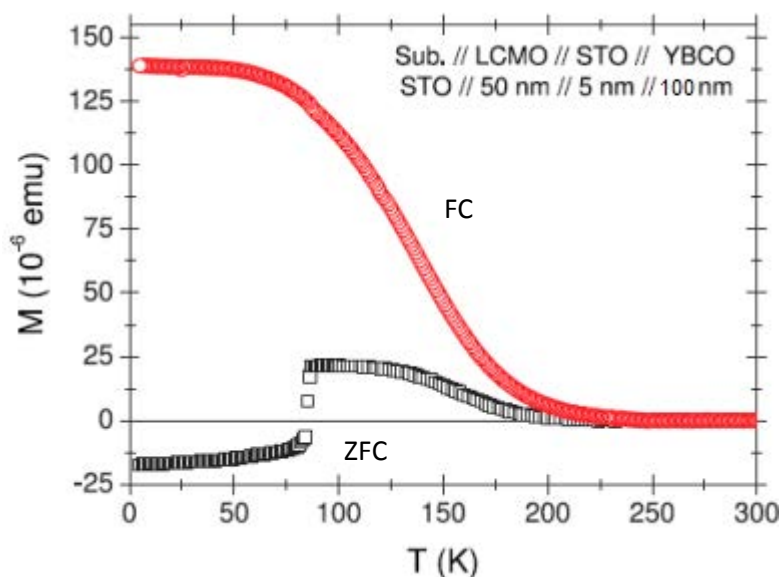


Figura 5.19: Magnetização versus temperatura de uma heteroestrutura de $\text{LCMO}_{50\text{nm}}/\text{STO}_{5\text{nm}}/\text{YBCO}_{100\text{nm}}$ em substrato de STO ($B = 10 \text{ Oe}$, $\parallel ab$). As curvas mostram ordenamento ferromagnético, em $T_{\text{Curie}} = 245\text{K}$ e transição supercondutora a $T_{\text{C}} = 87\text{K}$. (SOLTAN, 2005)

5.3.3 Super-redes $(\text{YBCO}_{\text{ds}}/\text{CE}_{\text{di}}/\text{LCMO}_{\text{df}})_{20}$ com $d_{\text{S}} = 20\text{nm}$ e $d_{\text{F}} = 20\text{nm}$

A Figura 5.20 ilustra todas as curvas de magnetização, ZFC e FC, das super-redes contendo CeO_2 e a referência SL2-0.

As curvas ZFC apresentaram características fortemente diamagnéticas após a transição supercondutora para as super-redes com 4, 8 e 16nm.

A super-rede CE4 mostrou a maior intensidade de magnetização e mais estreita transição supercondutora. Logo existe um limite de espessura do isolante para obter eficiência das propriedades magnéticas da super-rede.

É importante salientar que a amostra CE2 apresentou desempenho ruim ou instável em todas as medidas magnéticas e elétricas indicando que o processo de deposição foi prejudicado. Conseqüentemente, não será possível comparar suas propriedades magnéticas ou elétricas com as das outras amostras.

Os valores das T_{C} obtidos destas curvas encontram-se na Tabela 5.3.

As amostras com camadas isolantes, sempre mostram transição em temperaturas mais altas sinalizando menor acoplamento das camadas SC e FM.

Tabela 5.3: Valores de T_c e de T_{Curie} das super-redes com isolante CeO_2 .

CE	T_c (K)	T_{Curie} (K)
SL2-0	83	238
CE2	51	-
CE4	88	226
CE8	85	237
CE16	87	258

Em relação às curvas FC, as super-redes CE8 e CE16 apresentam o comportamento paramagnético abaixo de T_c .

Curiosamente, a super-rede CE4 apresenta comportamento aparentemente diamagnético de baixa intensidade mesmo com o estímulo magnético em FC. Neste caso poderia-se supor que o momento magnético de blindagem que surge automaticamente no supercondutor devido à aplicação de campo pode ter atravessado a interface entre o YBCO e o LCMO e causado a redução (ou eliminação) da magnetização da camada do ferromagneto (SOLTAN et al, 2005). Porém, não está claro porque este efeito é observado apenas para esta camada de isolante igual a 4nm.

Ainda sobre as curvas FC, é interessante notar o comportamento paramagnético abrupto visualizado para as amostras CE8 e CE16 em T_c , seguido de um padrão estável de magnetização. Isto indica a estabilidade dos spins da camada ferromagnética quando o campo está perpendicular à superfície da amostra.

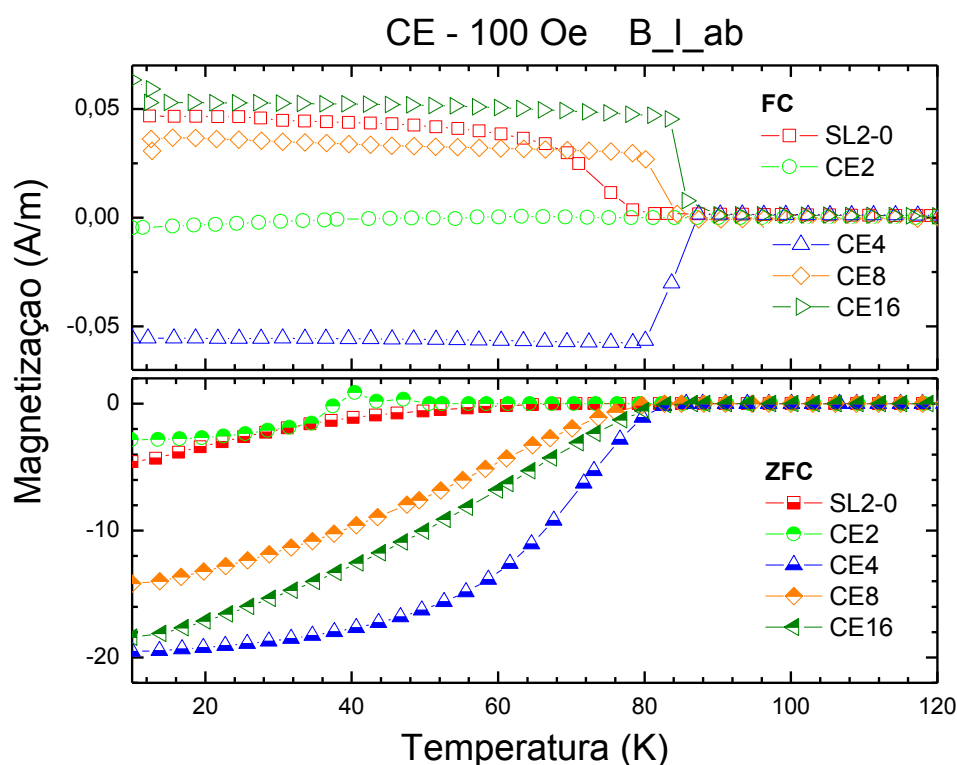


Figura 5.20: Curvas de magnetização ZFC e FC obtidos para as super-redes com isolante CeO_2 .

5.3.4 Super-redes $(\text{YBCO}_{d_S}/\text{PB}_{d_I}/\text{LCMO}_{d_F})_{20}$ com $d_S = 20\text{nm}$ e $d_F = 20\text{nm}$

Este isolante foi testado com espessuras de 0,5nm, 2, 4, 8 e 20nm.

A amostra de 0,5 nm foi feita usando a frequência de 4Hz por 2s, o que deve produzir uma camada menor que 1nm visto que a de 2nm foi depositada usando a frequência de 4Hz por 5s. Inicialmente o objetivo era depositar por apenas 1s apenas a fim de criar somente defeitos entre as camadas para posterior estudo. No entanto, a espessura mínima da camada é limitada pela rapidez do carrossel com os alvos, e não foi possível produzir um filme de qualidade em uma deposição tão rápida.

Na Tabela 5.4 são listadas as temperaturas de transição supercondutora, T_C , obtida nas curvas ZFC, e de ordenamento magnético, T_{Curie} , obtidas nas curvas FC. Considerando somente as três camadas usuais, 2, 4 e 8 nm, notamos uma tendência de crescimento destas duas importantes temperaturas com a espessura do isolante. Por um lado a camada de isolante se mostra gradualmente mais

eficiente na “decomposição” das propriedades magnéticas de camadas individuais. Por outro lado, o isolante não previne o efeito acumulado de volume de LCMO que assegura um valor de T_{Curie} proximamente equivalente a um sólido com a espessura total destas camadas.

A camada de PB20 não mais alcança estes benefícios pois está próximo de uma arquitetura que isola totalmente as propriedades de cada tipo de material, mas também isola os provindos do mesmo tipo de cada camada. Aparentemente não há vantagens em que a camada do isolante seja da mesma espessura que as camadas YBCO e LCMO.

Grandes novidades são observadas para a camada de 0,5nm que, apesar de extremamente delgada, tem sua inserção resultando em T_C significativo próximo de 83K e T_{Curie} equivalente a uma espessura muito maior de LCMO.

Tabela 5.4: Valores de T_C (ZFC) e de T_{Curie} (FC) das super-redes com isolante PBCO.

PBCO	T_c (K)	T_{Curie} (K)
SL2-0	83	238
PB1/2	83	254
PB2	77	189
PB4	83	223
PB8	86	234
PB20	80	212

Na Figura 5.21 são mostradas as curvas de magnetização ZFC e FC obtidas para estas super-redes. As curvas ZFC apresentaram comportamento diamagnético, enquanto que as curvas FC não apresentam nenhuma tendência.

A amostra PB20 se comporta totalmente o inverso do normal e em ZFC apresenta paramagnetismo com magnetização de 0,7 A/m em 10K, caindo gradativamente até T_C , quando inverte de sinal e gradualmente perde a magnetização. Comportamento similar ao que ocorre com o filme fino de LCMO,

porém, sua magnetização é suprimida em T_{Curie} , e não em T_c , como ocorre nesta super-rede.

As curvas FC de PB2, PB4 e PB20 ficaram diamagnéticas abaixo de T_c , mas acima desta temperatura apresentaram comportamentos variados e instáveis.

A curva de PB8 em ZFC era diamagnética abaixo de T_c , mas acima revelou ordenamento paramagnético.

A super-rede PB1/2 em FC mostrou ordenamento paramagnético ao longo de toda a faixa de temperatura variada. Mas em ZFC apresentou o diamagnetismo de 10K até T_c .

Estas observações podem indicar que este sistema tenha uma terceira interação forte, o PBCO.

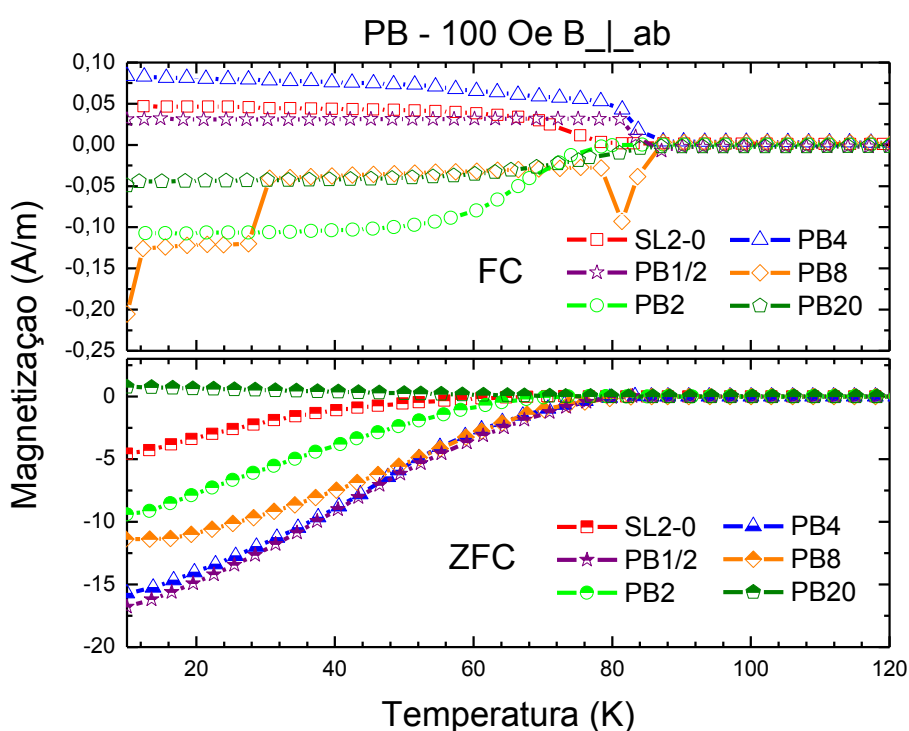


Figura 5.21: Curvas de magnetização ZFC e FC obtidas para as super-redes com isolante PBCO.

5.3.5 Comparação entre isolantes com espessuras de 4nm e 8nm

Esta seção tem como objetivo comparar a influência de cada material utilizado como camada isolante nas propriedades magnéticas das super-redes preparadas. Para isso foram consideradas somente os resultados obtidos para camadas de 4nm e 8nm.

Após os experimentos de magnetização realizados é possível afirmar com certeza que a presença da camada isolante, qualquer das estudadas, garante maior intensidade da resposta magnética das super-redes. A evidência para isso é o fato da magnetização da super-rede referência, SL2-0, sempre possuir valores inferiores ao das super-redes com isolante, conforme será ressaltado nas figuras a seguir.

As curvas de magnetização em função da temperatura realizados em ZFC são comparadas na Figura 5.22(a). Nelas pode-se visualizar a diferença entre a presença ou não da camada isolante visto que tanto a resposta magnética como a concavidade da curva são diferentes. A queda da magnetização ocorre muito mais rápida quando o isolante é empregado. Na figura está claro que a camada de 4nm do isolante de óxido de cério, CE4, produz a super-rede de maior sinal diamagnético e mais estreita transição supercondutora nestas condições. De acordo com OKTEM *et al.* (2007) a qualidade de filmes finos supercondutores são reconhecidos pela largura da transição. No entanto, devido à arquitetura diferenciada destas super-redes, não se pode esperar que tais características sejam atendidas com extremo rigor.

No gráfico da magnetização nota-se que o restante das curvas obtidas para os outros isolantes estão muito próximas. A normalização, Figura 5.24(b), revela que as curvas PB4 e ST2-4 são bastante semelhantes. A curva ST1-4 apresenta um aumento do sinal diamagnético com relação a ST2-4, no entanto isto é justificado pela maior espessura da camada YBCO ($d_S = 20\text{nm}$ e $d_F = 10\text{nm}$) desta super-rede.

Em relação a T_C , a maior foi a de CE4, 88K, seguida pelas amostras PB4, ST1-4 e ST2-4 com T_C de 83K, 83K e 80K, respectivamente. Como todas as amostras foram preparadas com a mesma pressão de oxigênio durante o recozimento, não é possível atribuir as diferenças de T_C à perda de estequiometria de oxigênio. (BENZI; BOTTIZZO; RIZZI, 2004)

A Figura 5.23(a) referente às amostras com 8nm de isolante entre as camadas de supercondutor e de ferromagneto apresentam resultados ligeiramente diferentes entre si, porém com intensidade mais elevada que o SL2-0, como o esperado. A curva da PB8, semelhante à PB4, apresentou o menor sinal diamagnético. E a ST2-8, ao contrário da ST2-4, apresentou o maior sinal.

As curvas plotadas com magnetização normalizada, Figura 5.23(b), indicam comportamentos muito semelhantes para todas as super-redes com 8nm de isolante. Apenas na região entre 40 e 60K houve um pequena diferenciação de perfil favorecendo a CE8 e desfavorecendo a ST1-8.

Nestes casos a T_C e a largura da transição foram praticamente as mesmas para todas as amostras.

Nas análises destas amostras deve-se levar em consideração que a magnetização medida corresponde à magnetização resultante da soma das respostas magnéticas das camadas ferromagnéticas e supercondutoras, as quais estão em igual proporção volumétrica na super-rede. Logo, o efeito diamagnético será tanto maior quanto mais efetivo for a blindagem em torno do ferromagneto feita pela camada do isolante ou vice-versa. Porém, a condição ZFC não favorece a resposta do ferromagneto. Adicionalmente pode-se considerar que, em sendo o campo aplicado perpendicularmente às camadas, parte deste campo pode estar sendo cancelado pelas supercorrentes antes de atingir a camada ferromagnética. Em ocorrendo este cancelamento o sinal do ferromagneto fica prejudicado.

Na Figura 5.24(a) são mostradas curvas resultantes do procedimento FC com as amostras com 4nm de isolante.

As amostras que respondem ao campo magnético de forma não diamagnética são as PB4 e SL2-0, que apresenta o PME. Dentre estas, a PB4 é a que mais intensa e rapidamente responde como material ferromagnético. Sua T_{curie} fica em torno de 220K (inserção da Figura 5.24(a)).

A super-rede ST2-4 apresenta comportamento instável em torno de T_C , onde ela apresenta um ligeiro início de comportamento paramagnético, mas sua magnetização começa a decrescer, indicando um comportamento diamagnético.

Assim como a super-rede ST1-4, esta amostra também não apresenta nenhum comportamento ferromagnético.

As super-redes ST1-4 e CE4 apresentam resultado diamagnético abaixo de T_C , isto é, abaixo de 83K. A amostra ST1-4 possui a camada supercondutora igual ao dobro da espessura da camada ferromagnética, por isso seu comportamento é sobretudo diamagnético. Porém, sua magnetização chega rapidamente a um valor de saturação que permanece até 10K. Em relação à amostra CE4, esta apresenta curva relacionada ao ferromagnetismo na mesma faixa de temperatura que a super-rede SL2-0, porém em T_C igual a 87K a magnetização cai abruptamente até atingir um nível de saturação em magnetização mais negativo que todos. Para o caso deste isolante e esta espessura, favoreceu-se o comportamento supercondutor sem o PME. Segundo LUZHBIN *et al.* (2004), a redistribuição não homogênea de vórtices, responsável pelo PME, é extremamente sensível à qualquer mudança das condições experimentais. Assim, as condições experimentais desta amostra não favoreceram o aparecimento do PME.

O comportamento de ST1-4, Figura 5.24, indica que a espessura da camada supercondutora ou ferromagnética, tem influência maior que a espessura do isolante.

As curvas das super-redes com 8nm de isolante são mostradas na Figura 5.24(b). Para as super-redes SL2-0 e ST2-8 a mudança no procedimento não implicou em mudança de comportamento. Para o caso da ST1-8 o diamagnetismo mais que dobrou de intensidade devido exatamente à barreira com o dobro de espessura.

Em relação as super-redes PB8 e a CE8, houve uma inversão de comportamento com relação às PB4 e CE4, respectivamente.

Na inserção da Figura 5.24 é possível observar que a CE8 apresenta uma região com comportamento contrário ao esperado, isto é, era esperado que houvesse uma magnetização positiva indicando o comportamento ferromagnético, conjuntamente com sua T_{Curie} , porém, a magnetização detectada foi negativa indicando diamagnetismo. Este comportamento pode ser atribuído ao erro do equipamento ao detectar o sentido da magnetização, pois quando o momento

magnético detectado é $\leq a 10^{-5}$ emu, com campo de 100 Oe, pode haver troca de sentido em função da baixa magnetização. A Figura 5.25 referente à curva de histerese magnética da mesma amostra, indica que não há um comportamento diamagnético em 100K, temperatura acima de T_c .

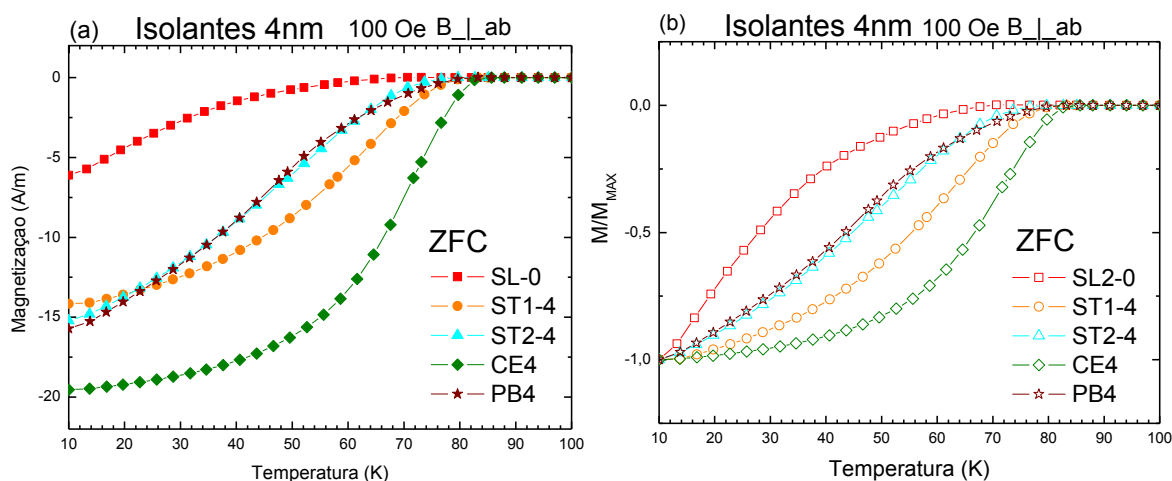


Figura 5.22: (a) Curvas de magnetização ZFC com campo magnético de 100Oe aplicado perpendicularmente à superfície dos filmes com 4nm de isolante. (b) Curvas normalizadas.

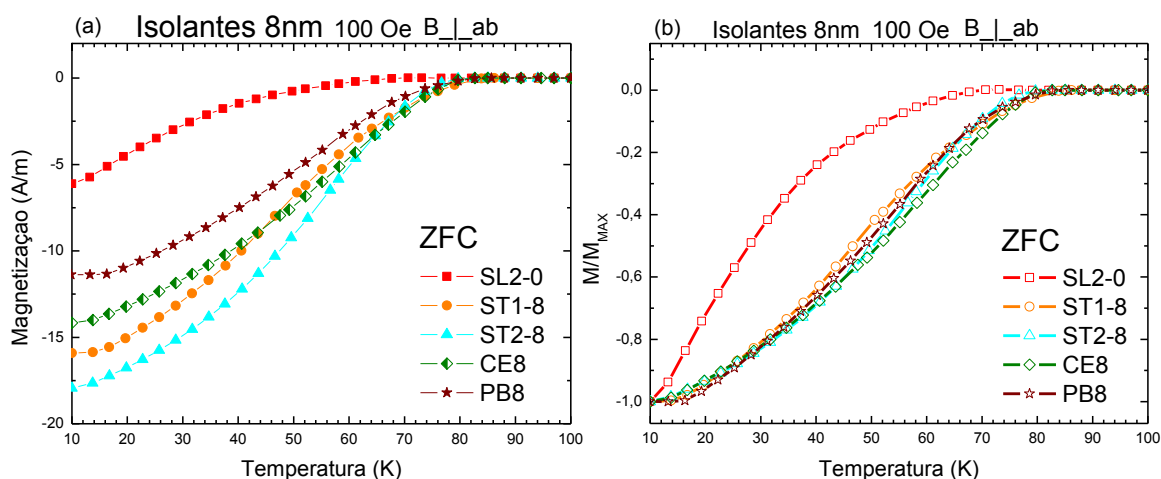


Figura 5.23: (a) Curvas de magnetização ZFC com campo magnético aplicado de 100 Oe, perpendicular à superfície dos filmes com 8nm de isolante. (b) Curvas normalizadas.

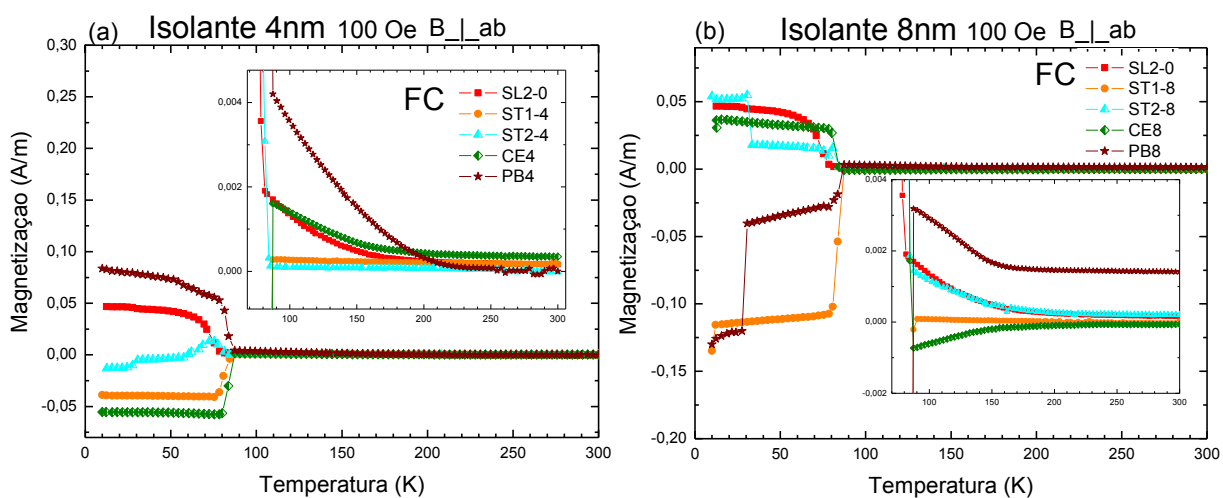


Figura 5.24: Curvas de magnetização FC com campo magnético de 100 Oe aplicado perpendicularmente à superfície dos filmes com (a) 4nm e (b) 8nm de isolante.

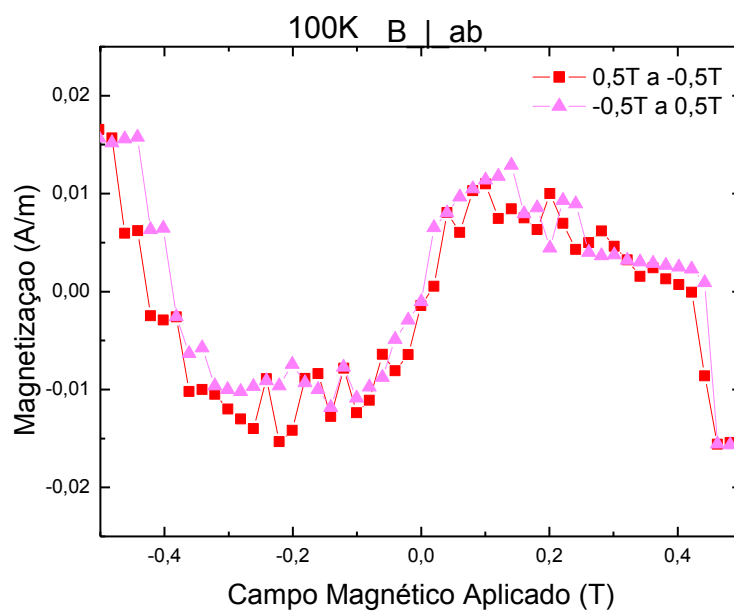


Figura 5.25: Curvas de histerese magnética da super-rede CE8, realizada a 100K com campo perpendicular à superfície da amostra.

5.3.6 Medidas de histerese magnética

Foram realizadas medidas de histerese magnética a 10K com campo perpendicular à superfície das super-redes, em todas as super-redes. Em alguns casos foram também realizadas medidas de histerese magnética a 100K com campo perpendicular e/ou paralelo à superfície. Este tipo de análise pode ajudar a esclarecer o caráter magnético das super-redes estudadas visto que o formato da curva indica a natureza do material como um todo.

A Figura 5.26 mostra as curvas de histerese magnética, curvas das quais é possível extrair dados para obtenção das curvas de J_c , através do Modelo de Bean. Todas as super-redes apresentam magnetização menor que a amostra de YBCO de aproximadamente 400 nm preparado apenas para fins de comparação. A escolha da espessura deste filme de YBCO foi feita considerando que cada camada de YBCO na super-redes é de 20nm e que esta é repetida 20 vezes, de forma que a espessura total das camadas YBCO nas super-redes é de 400nm.

A medida de histerese magnética do YBCO apresentada nesta figura, realizada até 5T, não satura, que é o mesmo comportamento ocorrido na *tri-layer* FM/SC/FM de MORÁN *et al.* (2008), quando feita em baixa temperatura. Tal comportamento mostra que para uma camada supercondutora entre duas camadas ferromagnéticas de mesma espessura (78nm cada), ainda é possível haver histerese tipicamente supercondutora em baixas temperaturas. Porém, o ferromagneto presente ajuda a suprimir a capacidade diamagnética do supercondutor com mais eficiência. Tal fato é reportado por PEÑA *et al.* (2004), onde sua super-rede $(\text{LCMO}_{5\text{nm}}/\text{YBCO}_{15\text{nm}})_{\times 8}$, apresenta histerese tipicamente supercondutora, enquanto que sua super-rede $(\text{LCMO}_{15\text{nm}}/\text{YBCO}_{15\text{nm}})_{\times 5}$, apresentam comportamento ferromagnético, ambas a 5K. Este experimento evidencia mais uma vez que a espessura do LCMO (d_{FM}) influencia fortemente os resultados magnéticos.

As curvas de densidade de corrente crítica a 10K das amostras ST1 são apresentadas na Figura 5.27. As amostras SL1-0 e ST1-2 apresentaram curvas similares, com pequena deterioração desta última. Existe também um avanço de qualidade das ST1-4 e ST1-8 quando comparadas à SL1-0.

As curvas de J_c das super-redes, apresentadas na Figura 5.27, estão abaixo da curva de YBCO. Porém, a faixa de valores obtidos para a densidade de corrente crítica ainda são elevados quando comparados, por exemplo, com PEÑA *et al.*, 2004, que observou para a super-rede $(\text{LCMO}_{5\text{nm}}/\text{YBCO}_{15\text{nm}})_{\times 8}$, $J_c = 5,7 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ ($5,7 \times 10^8 \text{ A/m}^2$) para a mesma temperatura. O que é significativamente menor do que J_c obtido para um filme de YBCO de espessura comparável à sua amostra, $J_c = 10^{10} \text{ A/m}^2$.

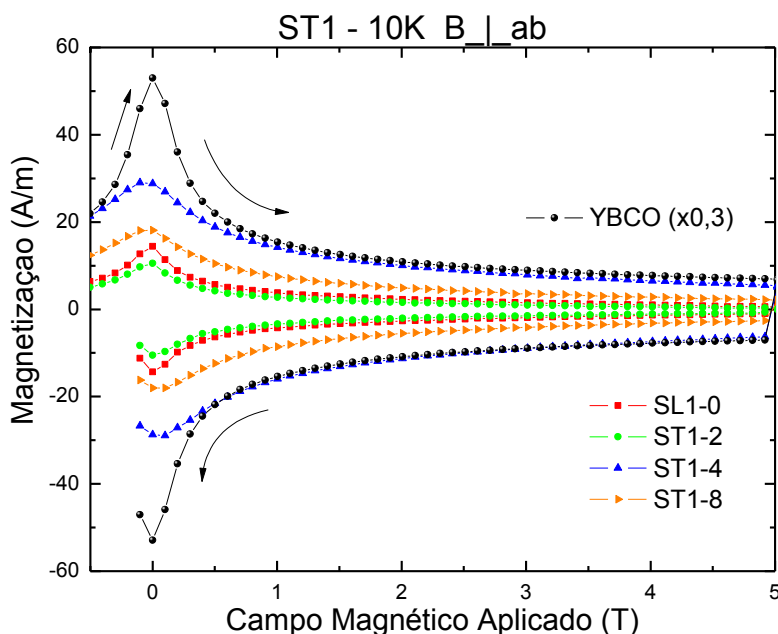


Figura 5.26: Curvas de histerese magnética do YBCO e das super-redes ST1, realizadas a 10K com campo perpendicular à superfície da amostra. Curva do YBCO foi multiplicada por 0,3 para melhor visualização das curvas.

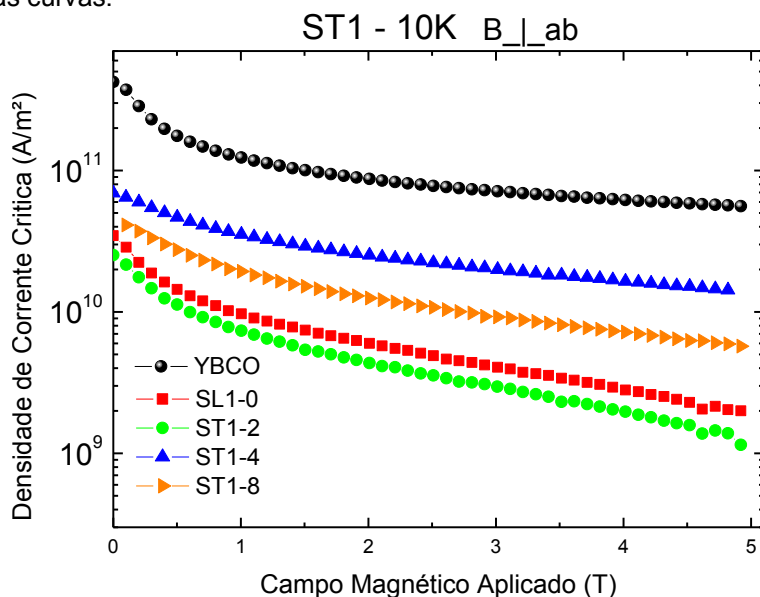


Figura 5.27: Curvas de densidade de corrente crítica a 10K, com campo magnético aplicado perpendicular à superfície dos filmes.

A Figura 5.28 mostra as curvas de histerese magnética para as amostras ST2, as intensidades de magnetização das amostras continuam sendo consideravelmente menores que o filme de YBCO. A amostra ST2-4 foi a que produziu menor sinal diamagnético.

As amostras ST2-2 e ST2-8 apesar de mostrar comportamento diamagnético, não apresentou a troca de sinal esperada quando o campo muda de sentido. Como é sabido, a magnetização possui uma parte positiva e outra negativa, de onde se extrai os dados para o cálculo de J_C . Porém, isto não ocorreu para estas super-redes, o que sugere interferência entre as camadas de LCMO e YBCO.

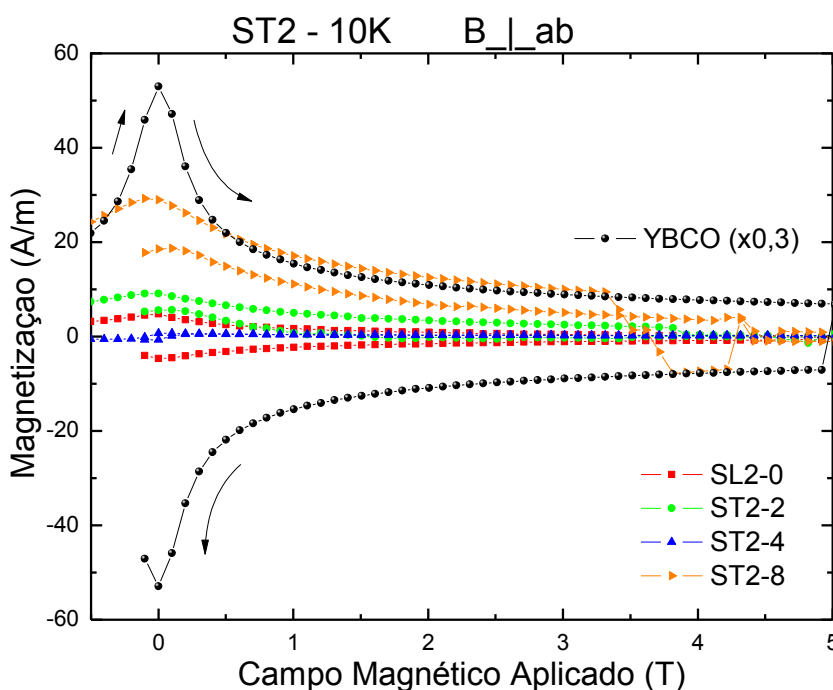


Figura 5.28: Curvas de histerese magnética do YBCO e das super-redes STO2, realizadas a 10K com campo perpendicular à superfície da amostra. Curva do YBCO foi multiplicada por 0,3 para melhor visualização das curvas.

As curvas de densidade de corrente crítica deste conjunto não foram calculadas devido aos problemas encontrados nas curvas de histerese.

Não foi possível realizar medidas de histerese magnética a 100K em todas as amostras, assim, foi realizado um estudo direcionado testando as amostras sem camada isolante e com a camada isolante de 8nm das super-redes ST1 e ST2.

As curvas de histerese magnética realizadas a 100K, das super-redes ST1-8 e ST2-8, na Figura 5.29, revelam um comportamento paramagnético, embora as curvas estejam com ruídos. Na amostra ST1-8 é possível visualizar que a saturação da magnetização ocorre em aproximadamente 0,006A/m, enquanto que a saturação da amostra ST2-8 não está clara, havendo muito ruído em suas extremidades e variando entre 0,002 e 0,013A/m.

A magnetização de saturação do LCMO bulk é 0,4A/m, e a redução observada pode ser atribuída a efeitos como a compensação do momento ferromagnético do YBCO à inclinação do spin Mn interfacial devido à supertroca na interface, também às transferências de troca na interface, que forçam a camada LCMO interfacial ordenar-se de forma antiferromagnética, e ao aumento das flutuações com a redução da dimensão. (ZHANG *et al.*, 2009)

LÓPES DE LA TORRE *et al.* (2006) mostra que a medida que a camada de LCMO aumenta, em um sistema YBCO/LCMO, a rapidez de saturação, a remanescência e a magnetização de saturação também aumentam (BRÜCK *et al.*, 2011). Analisando apenas a região central da medida, de -0,1T a 0,1T, é possível verificar esta tendência.

As histereses das amostras SL1-0 e SL2-0 não são apresentadas visto que elas não mostraram resposta magnética definida, apenas ruídos.

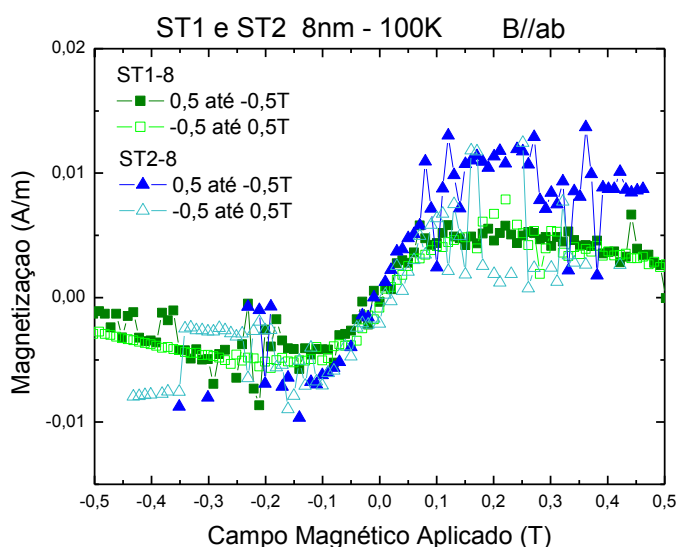


Figura 5.29: Curvas de histerese magnética das super-redes ST1-8 e ST2-8, realizadas a 100K com campo paralelo à superfície da amostra.

As histereses magnéticas a 10K das super-redes com CeO₂, CE, na Figura 5.30, envolvem magnetizações muito maiores que as observadas para as amostras STO1 e STO2 (Figuras 5.26 e 5.28). Analisando estruturalmente, as micrografias das Figuras 5.9 e 5.10 apontam que as super-redes STO são mais homogêneas que as super-redes com CeO₂. E por outro lado, não havendo grandes diferenças entre o comportamento das curvas de magnetização em função da temperatura para estes grupos, pode-se inserir que os defeitos estruturais presentes nas super-redes CE são os responsáveis pelo aumento da magnetização em resposta ao campo magnético aplicado.

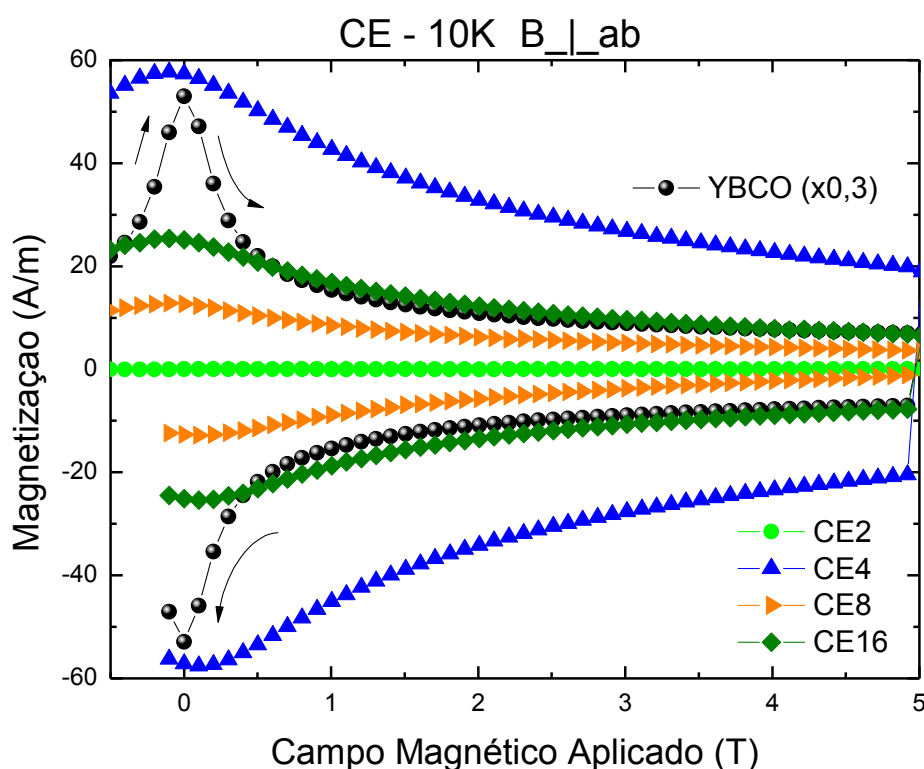


Figura: 5.30: Curvas de histerese magnética do YBCO e das super-redes CE realizadas a 10K, com campo perpendicular à superfície da amostra. Curva do YBCO foi multiplicada por 0,3 para melhor visualização das curvas.

A Figura 5.31 mostra um diagrama esquemático do comportamento de compressão de fluxo magnético através de aprisionamento magnético (*pinning*). Neste caso, o efeito é ilustrado em um sistema SC/FM, *bi-layer* de YBCO e LSMO (La_{0,7}Sr_{0,3}MnO₃), quando a amostra é submetida a medida FC. Quando $T_{SC} < T < T_{FM}$

(onde T_{SC} é a T_c do YBCO e T_{FM} é T_{Curie} do LSMO), o fluxo magnético penetra o YBCO uniformemente se o campo residual do LSMO é desconsiderado. Em temperaturas menores que T_{SC} , os fluxos magnéticos serão convertidos em vórtices supercondutores com supercorrentes circulares que atrairão os domínios ferromagnéticos de uma forma que a força de aprisionamento seja seu estado de equilíbrio. Assim a compressão de fluxo nos domínios ferromagnéticos é tão grande que a densidade de vórtices é descongestionada em outras regiões, permitindo a não uniformidade de densidade de vórtices na escala macroscópica (bem maior que a profundidade de penetração de London). O fluxo de corrente líquida fornece resposta paramagnética que compete com a resposta diamagnética do efeito Meissner. (CHEN *et al.*, 2010)

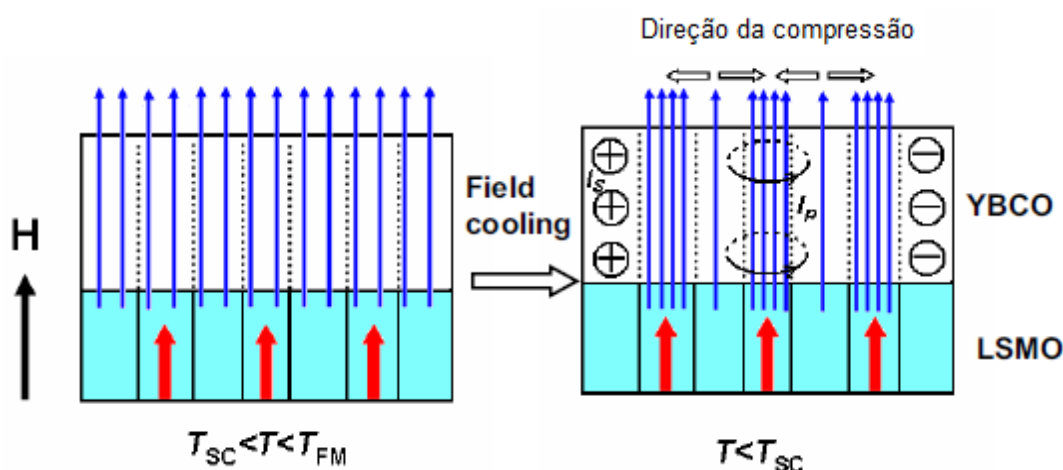


Figura 5.31: Diagrama esquemático da compressão de fluxo por aprisionamento magnético. Competição entre o diamagneto Meissner, representados pela corrente I_s , e as correntes de aprisionamento paramagnético I_p causada pela alta compressão de fluxo, permitindo observar o efeito paramagnético. As setas vermelhas (grossas) descrevem os momentos de spin do ferromagneto e as setas azuis (finas) representam o fluxo magnético. Os tracejados são apenas guias visuais. (CHEN *et al.*, 2010)

A Figura 5.32 ilustra as curvas de J_c calculadas a partir das curvas de histerese magnética (Figura 5.30). A amostra CE2 não apresentou histerese magnética, logo não foi possível calcular sua J_c .

A utilização do óxido de cério como isolante neste conjunto mostrou um dado importante nestes estudos. Somente neste caso as curvas de histerese foram de qualidade suficiente para extrair as curvas de J_c a 70K. As amostras preparadas

com o STO e o PBCO, nas espessuras estudadas, não produziram histerese magnética viável para cálculo de J_C nesta temperatura.

A super-rede CE4 foi a que apresentou maiores valores de J_C , tanto a 10K como a 70K, seguida da CE16 e da CE8. Não é claro o motivo pelo qual a amostra CE4 apresenta os maiores valores de J_C , que acima de 1T possui os mesmos valores do filme de YBCO utilizado como referência. Ainda que seja feita a suposição de que exista uma espessura ótima para cada tipo de isolante, podendo ser 4nm para o caso do CeO_2 , as curvas ZFC e FC sempre revelaram o acoplamento dos dois fenômenos. A espessura intermediária de 8nm, apresentou o pior desempenho deste conjunto de amostras, ficando acima apenas da referência SL2-0.

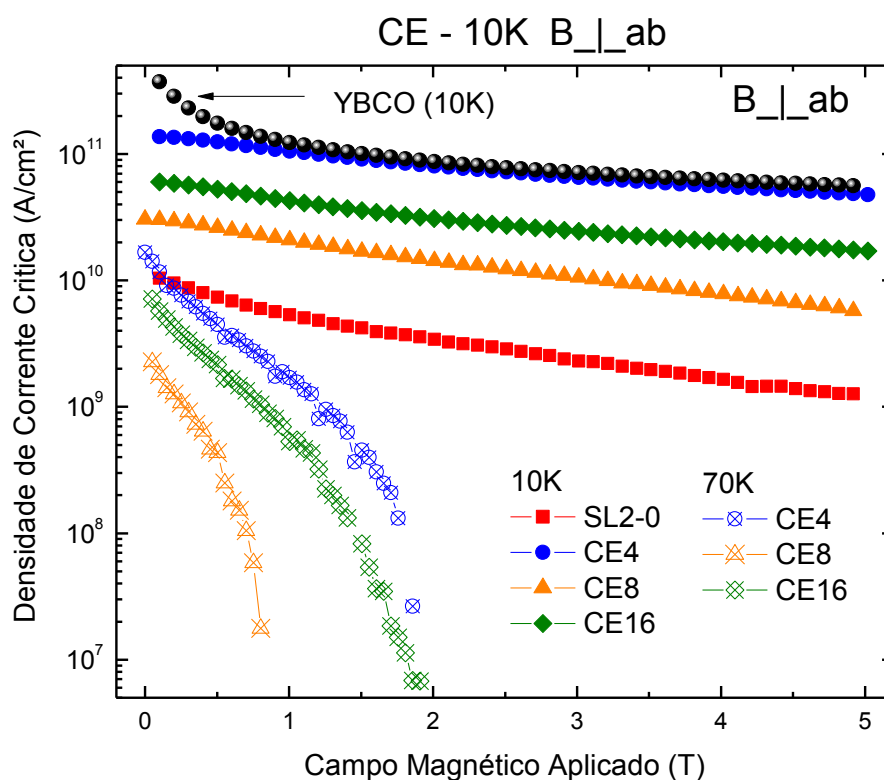


Figura 5.32: Curvas de densidade de corrente crítica a 10K e 70K, das super-redes CE, com campo magnético aplicado perpendicularmente à superfície dos filmes.

Os gráficos da força de aprisionamento, F_p , em função do campo magnético aplicado em 70K são apresentados na Figura 5.33(a). A curva resultante para CE4 chega a atingir o dobro da força encontrada para CE16 no ponto máximo em aproximadamente 0,5 T. Porém as duas curvas apresentam comportamento

bastante similares, como visto na normalização na Figura 5.33(b). A super-rede CE8, como previsto na curva de densidade de corrente, apresenta força de aprisionamento pouco intensa e em apenas uma pequena região até 0,8T.

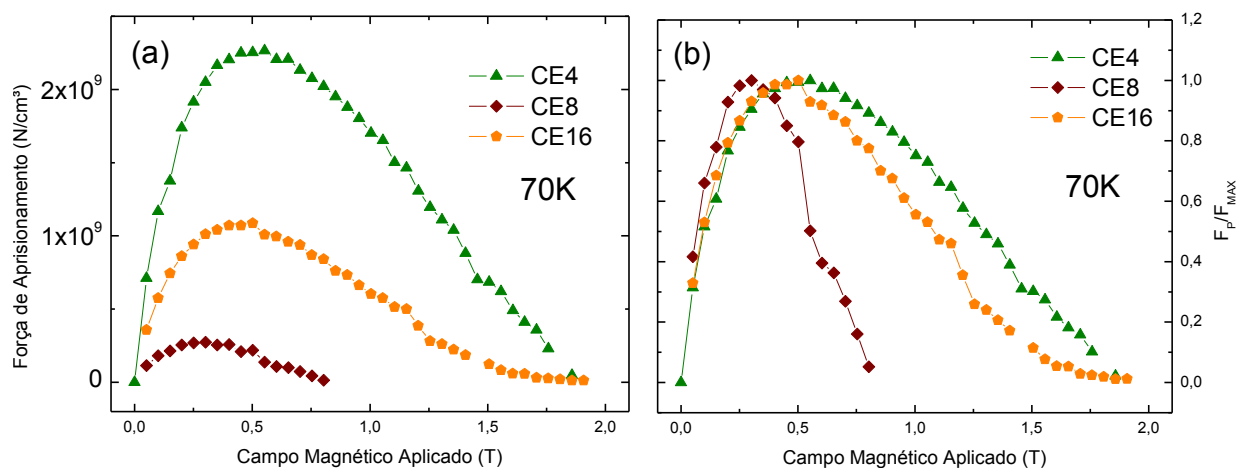


Figura 5.33: (a) Força de aprisionamento do terceiro conjunto de amostras a 70K. (b) Força de aprisionamento normalizada.

Segundo SOU *et al.* (2005), filmes de YBCO com pontos de ferromagneto LSMO ($\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$), *magnetic dot*, em sua rede aumentam a J_C do filme para campo magnético aplicado acima de 0,4 T a 83K. Entretanto, as curvas se invertem para temperaturas menores que 80K, e o filme sem *magnetic dots* passa a ter J_C maiores acima de 0,2 T (Figura 5.34). Isto significa que o efeito de aprisionamento depende da temperatura e que os pontos do ferromagneto (*magnetic dots*) influenciam a F_p apenas nas regiões próximas a T_C . Neste mesmo artigo são mostradas as curvas de força de aprisionamento, F_p , em função do campo aplicado até 3T (Figura 5.35). Comparando as amostras com e sem *dots*, nota-se que a presença dos *dots* alavanca as intensidades de F_p quando a temperatura é mais alta (83K), ou seja, mais próximo de T_C . Mas a força de aprisionamento do filme sem *dots* é bem mais intenso quando em temperaturas mais baixa (80K).

Para o caso de pastilhas de YBCO, a dopagem com 4%p. de BTO (BaTiO_3) apresenta comparativamente maiores valores de F_p tanto em baixa quanto em altas temperaturas. (JHA *et.al*, 2009)

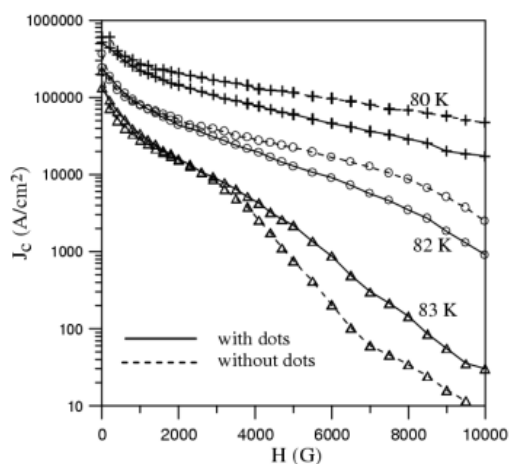


Figura 5.34: Curvas de densidade de corrente crítica a 80, 82 e 83K obtidas para filmes de YBCO com *magnetic dots* de LSMO. (SOU *et al.* 2005)

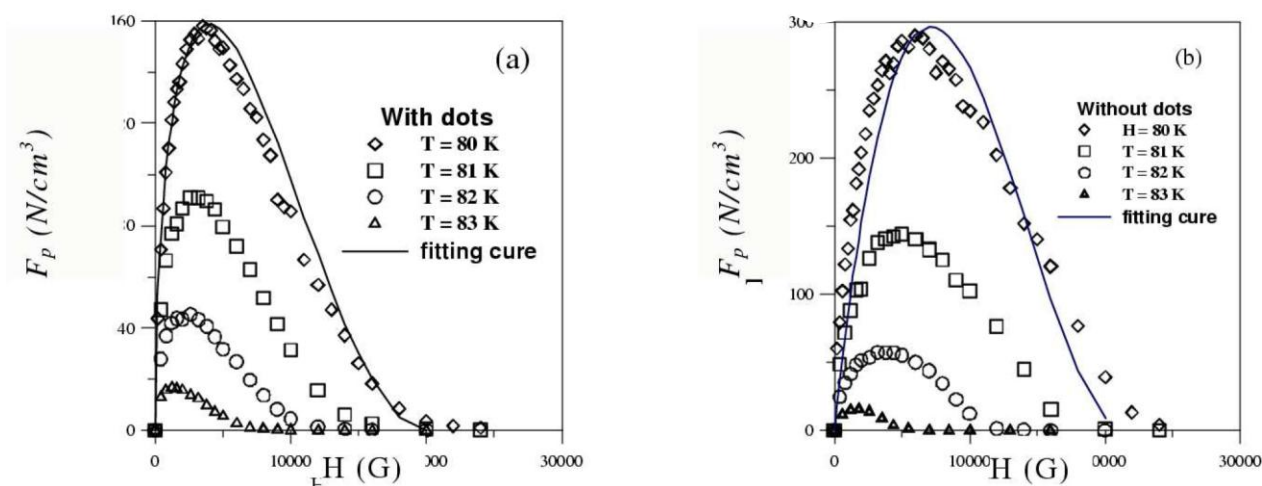


Figura 5.35: (a) Força de aprisionamento calculadas em várias temperaturas para filme de YBCO coberto com *magnetic dots*. (b) Força de aprisionamento dos filmes YBCO sem *magnetic dots*. (SOU *et al.* 2005)

As curvas de histerese magnética a 100K para as super-redes CE4 e CE16 são apresentadas na Figura 5.36. Para ambas observa-se o comportamento paramagnético com saturação de magnetização a 0,08A/m. Lembrando que a magnetização de saturação volumétrica do LCMO é 0,4A/m, e o da amostra com STO é aproximadamente 0,006A/m, fica evidenciado que as supe-redes com CeO_2 se encontram em uma situação intermediária de magnetização. As justificativas para a redução da saturação podem ser as mesmas descritas para o STO. (ZHANG *et al.*, 2009)

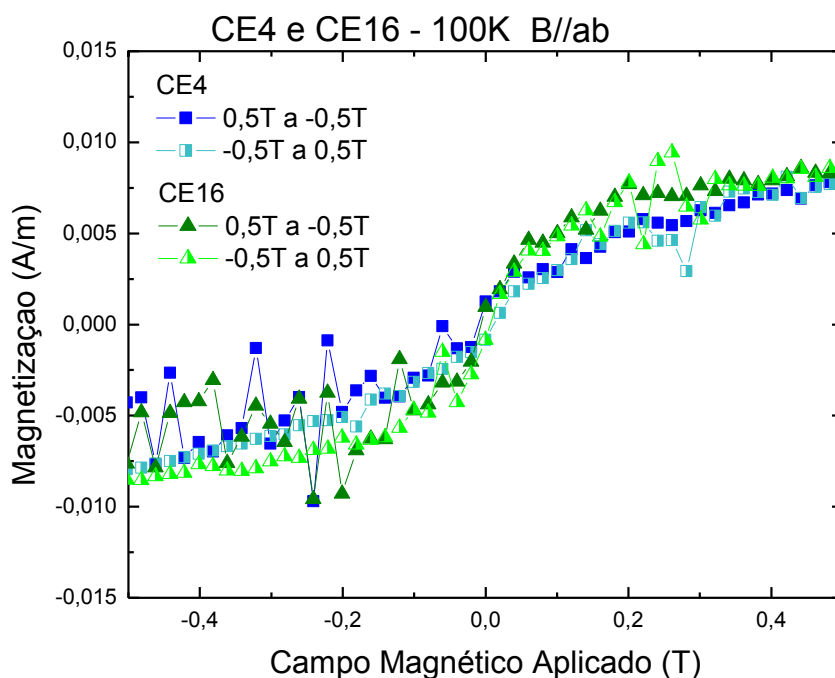


Figura 5.36: Curvas de histerese magnética das super-redes CE4 e CE16, realizadas a 100K com campo paralelo à superfície da amostra.

Em relação às histereses magnéticas a 10K, Figura 5.37, é possível observar que as super-redes com PBCO, também apresentaram comportamento diamagnético, assim como as super-redes com STO e CeO₂ como isolantes. Os valores de magnetização das super-redes com PBCO, estão próximos às das amostras com STO. Estruturalmente, as super-redes com PBCO são homogêneas, como é possível observar na micrografia da seção transversal da super-rede PB8, Figura 5.10 (PBCO). As super-redes com STO como isolante apresentam microestruturas ainda mais homogêneas do que as com PBCO. Contudo, a homogeneidade da microestrutura não garante a resposta magnética desejada para as densidades de corrente críticas.

Assim como o segundo conjunto de super-redes com STO entre as camadas SC/FM, neste conjunto também não foi possível traçar as densidades de corrente crítica, pois a única super-rede que apresentou histerese adequada foi a PB4. As outras não apresentaram uma curva definida de histerese (PB1/2 e PB20) ou uma histerese extremamente baixa e instável (PB4 e PB8). Na Figura 5.37 é possível observar todas estas características.

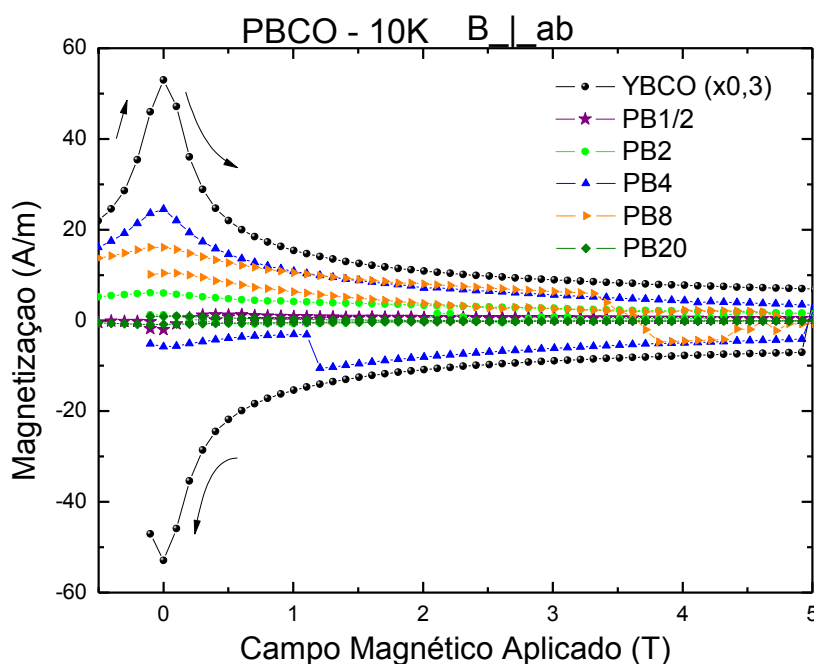


Figura 5.37: Curvas de histerese magnética do YBCO e do conjunto de super-redes com PBCO realizadas a 10K, com campo perpendicular à superfície da amostra. Curva do YBCO foi multiplicada por 0,3 para melhor visualização das super-redes.

A Figura 5.38 ilustra algumas curvas de histerese magnética realizadas a 100K, sob campo magnético aplicado perpendicular e paralelo à superfície da amostra. As medidas foram iniciadas a 0,5T até -0,5T e em seguida foi realizada a curva da volta (-0,5T até 0,5T). Em todos os casos o comportamento foi típico de material paramagnético, não apresentando histerese.

Nestas medidas ficou claro que a saturação da magnetização aumenta a medida que a espessura do PBCO nas super-redes aumenta. De uma forma não esperada, a amostra “PB8 invertido”, cuja sequência de deposição se iniciou com a LCMO e finalizou com o YBCO, apresentou os maiores valores de magnetização (campo \perp e \parallel) de todas as super-redes PB depositadas na sequência que se inicia com YBCO e termina com LCMO. Mais análise será necessária a fim de esclarecer estas evidências.

Estes gráficos foram traçados na mesma escala facilitando a comparação entre eles. Em todos os casos observa-se que as medidas realizadas sob campo paralelo apresentam valores de magnetização maiores. Na Figura 5.38(b) as super-

redes PB20 e PB8 invertido apresentaram comportamento mais íngremes comparados com todas as super-redes. Isto pode estar relacionado à capacidade da camada isolante desacoplar as camadas SC e FM, pois a super-rede PB20 é a que apresenta camada mais espessa de PBCO.

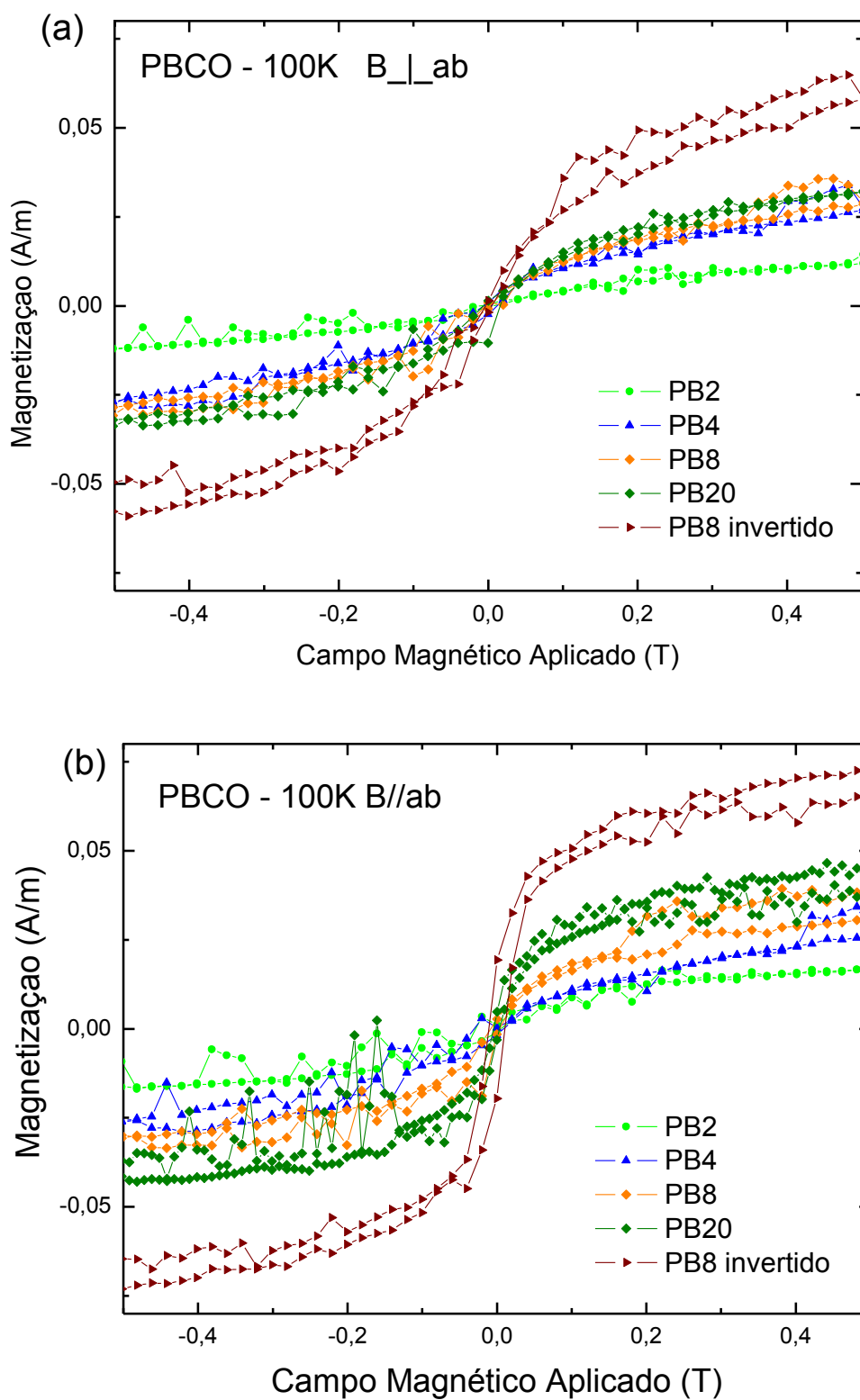


Figura 5.38: Curvas de histerese magnética das super-redes PB2, PB4, PB8, PB20 e PB8 invertido, realizadas a 100K com campo magnético (a) perpendicular e (b) paralelo à superfície da amostra.

5.4 Medidas Eléctricas

As medidas de transporte foram feitas nas super-redes preparadas com cada um dos três isolantes escolhidos usando o método das quatro pontas (VAN DER PAUW, 1958) como mostrado na Figura 4.9. Os eletrodos de aplicação de corrente e de medida de tensão foram conectados na camada do topo, ou seja no LCMO.

Em todos os experimentos as medidas foram precedidas de resfriamento a 10K sem aplicação de campo magnético. A coleta de dados foi feita sempre com a aplicação de corrente de 10 μ A durante o aquecimento de 10K até 300K. Os gráficos de resistividade tiveram seus dados traçados em escala logarítmica a fim de possibilitar a detecção de pequenas variações nas curvas após a transição supercondutora.

Neste tipo de medida a aplicação de campo magnético foi feita sempre na direção paralela à superfície do filme.

5.4.1 Super-redes (YBCO_{dS}/STO_{dI}/LCMO_{dF})₂₀ com d_S = 20nm e d_F = 10nm

O primeiro conjunto de amostras é referente às super-redes com camadas isoladas com SrTiO₃ com espessuras d_I = 2, 4 e 8nm e camada YBCO de duas vezes a camada de LCMO, como descrito na Tabela 4.2.

A Figura 5.39 ilustra as curvas de resistividade em função da temperatura do primeiro conjunto de amostras conforme descrito na Tabela 4.1. Em temperaturas acima da transição supercondutora as super-redes se comportam de maneira típica de cerâmicas isolantes eléctricas, o que é condizente com o fato de todos os materiais depositados serem óxidos. A curva de resistividade observada nesta faixa de temperatura se desloca para valores superiores à medida que aumenta a espessura do isolante de 2nm para 8nm indicando maior resistividade da super-rede.

Embora as curvas sejam praticamente idênticas na faixa acima da temperatura de transição supercondutora, o comportamento para cada amostra é distinto para temperaturas abaixo de T_C. Nesta região todas apresentaram resistividade residual que se manifestou de maneiras diferenciadas e que serão

analisadas mais adiante juntamente com as amostras contendo outros materiais isolantes.

Por outro lado, observa-se que o crescimento de T_c acompanha o crescimento da espessura do isolante. As T_c das super-redes SL1-0, ST1-2, ST1-4 são aproximadamente 81K, 82K, 85K, respectivamente. Esta é uma tendência esperada devido à blindagem progressiva do ferromagneto que o isolante pode oferecer ao supercondutor à medida que se torna mais espesso.

Entretanto, a curva da amostra ST1-8 não deu sequência à esta tendência. Esta super-rede, apesar de ter sua curva atendendo às características gerais das outras deste conjunto, ela apresentou parâmetros de controle completamente diferentes. A transição foi alargada e atrasada, $T_c \sim 80K$, e a resistividade após a transição ainda apresentou nível elevado, $1-2 \times 10^{-13} \Omega.m$, comparado com $2-8 \times 10^{-15} \Omega.m$ observado para as outras amostras. A justificativa para este comportamento não está clara. Porém, deve-se ressaltar que neste caso a espessura do isolante se aproxima daquela do ferromagneto, sendo que a técnica de deposição também possui limites de confiança dentro da ordem de tal diferença.

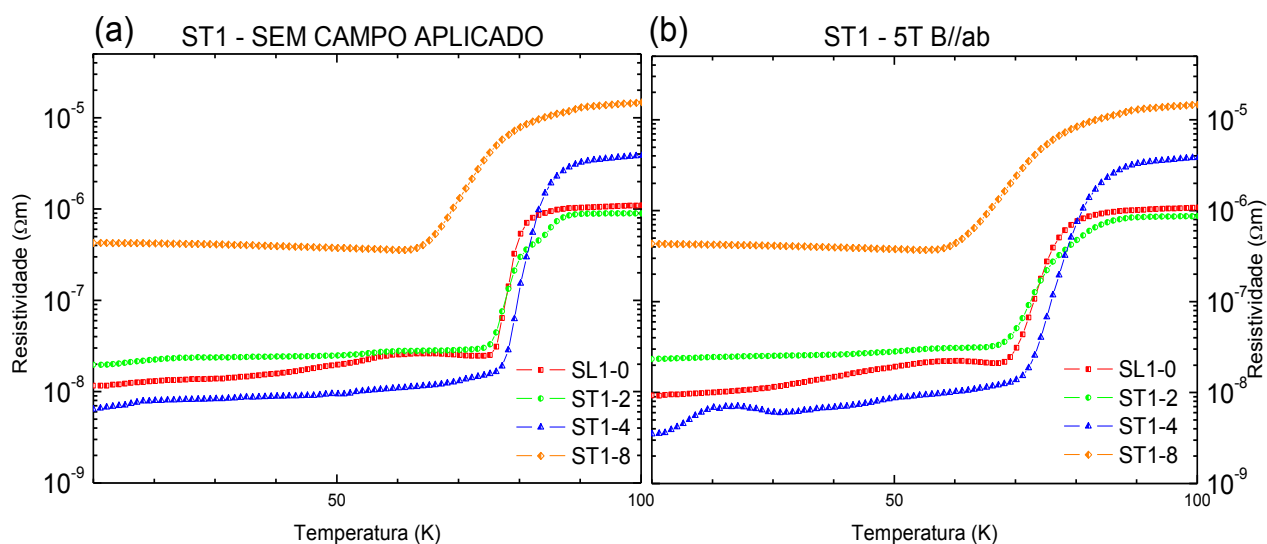


Figura 5.39: Medidas de transporte do primeiro conjunto de amostras sem isolante (SL1-0) e com camadas de STO de 2, 4 e 8nm, (a) sob campo nulo e (b) sob campo magnético de 5T aplicado paralelamente à superfície dos filmes. Os gráficos inseridos mostram a região acima de 60K em escala linear.

É importante apontar que a arquitetura deste conjunto, com a espessura de camada LCMO tendo metade da camada YBCO, limita significativamente os efeitos que poderiam estar sendo provocados devido a proximidade do ferromagneto. Nesta situação estes efeitos podem ser excessivamente atenuados pela inserção da camada isolante, impedindo uma análise mais conclusiva.

O gráfico linear inserido na Figura 5.39 comprova a existência da transição metal-isolante característica do LCMO em torno de 200K na amostra ST1-8.

De acordo com alguns autores (MALIK *et al.*, 2012) (HEINZE *et al.*, 2012), a curvatura típica que as super-redes de YBCO/LCMO apresentam ao redor de T_{Curie} , relacionada à transição metal-isolante (*MIT – Metal-Insulator Transition*) do LCMO, em torno de 220K, é encontrada para filmes com duas camadas (*bi-layer*) ou múltiplas camadas (super-redes), desde que a camada de LCMO seja significativamente maior que a camada de YBCO (veja Figura 5.40). Entretanto, surpreendentemente, observa-se a transição metal-isolante na super-rede que possui camada de LCMO com a metade da espessura da YBCO.

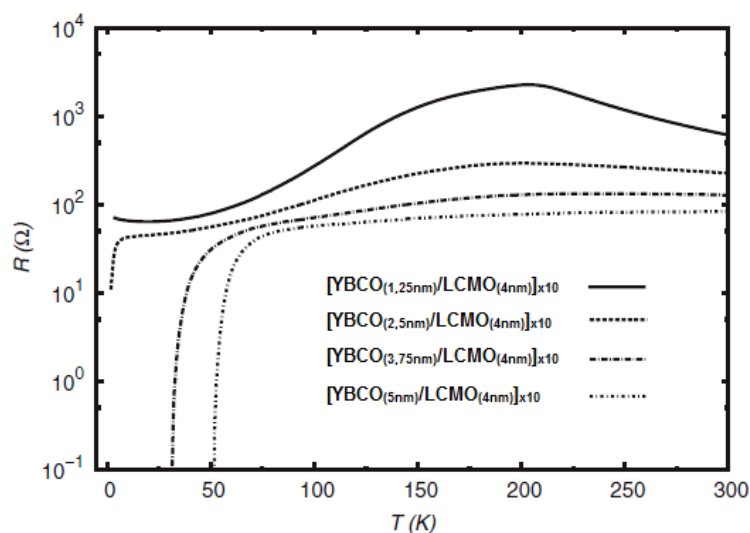


Figura 5.40: Curva de resistência em função da temperatura das super-redes [YBCO/LCMO]_{x10}. (MALIK *et al.*, 2012)

5.4.2 Super-redes (YBCO_{dS}/STO_{dI}/LCMO_{dF})₂₀ com d_S = 20nm e d_F = 20nm

O segundo conjunto de amostras é referente às super-redes com camadas também isoladas com STO de espessuras $d = 2, 4$ e 8nm , porém com camadas iguais de YBCO e LCMO, como descrito na Tabela 4.2.

Nas curvas de resistividade em função da temperatura (Figura 5.41(a) sem campo aplicado e (b) sob campo paralelo de 5T) para estas amostras.

O comportamento geral das curvas são muito semelhantes entre si na faixa acima da temperatura de transição supercondutora, porém são distintas para temperaturas abaixo de T_C . Nesta região todas as super-redes com isolantes apresentaram resistividade residual (*background*) semelhantes.

Sobre a amostra SL2-0, super-rede sem isolamento entre as camadas YBCO e LCMO, esta mostrou características completamente diversas das outras, tendo transição mais larga e em temperatura bem mais abaixo da típica. Esta característica é justificada pela ausência de um elemento de blindagem como o isolante, existindo provavelmente a interferência entre os parâmetros de ordem de ambos os materiais supercondutor e ferromagnético.

Esta super-rede apresenta ainda resistividade anômala, com vale de resistividade em 57K , no T_C^{offset} , que não é típico de camadas supercondutoras nem ferromagnéticas de espessura comparável, e que atravessa duas ordens de grandeza de resistividade. O vale que ocorre em T_C^{offset} será analisado mais adiante junto com outros tipos de vale também observados para outros isolantes. Particularmente para este vale é possível perceber que há interação com o campo aplicado paralelamente à superfície.

Quanto à curva da super-rede ST2-2, com camada isolante de 2nm , esta apresentou características diferenciadas das outras deste grupo. Possui a T_C mais alta de todas apesar de ter o isolante mais fino. A queda de resistividade também ocorreu de maneira diferenciada das outras, pois a resistividade em T_C^{offset} cai como esperado em 81K , mas se eleva em seguida caracterizando também um vale como o de SL2-0. Esta ocorrência será comparada com outras mais a frente.

Com relação às outras super-redes, ST2-4 e ST2-8, estas tem suas transições alargadas e atrasadas dependendo da espessura do isolante. Este fato está, em parte, em acordo com PEÑA *et al.* (2004) que afirma que pode haver supressão de T_C devido a proximidade do LCMO, sendo esta dependente da espessura do LCMO (SEFRIQUI *et al.*, 2003). O autor se refere à interação entre as camadas supercondutora e ferromagnética quando não existe isolamento entre as camadas antagônicas. Entretanto, sugere-se que a mesma observação pode ser feita em função da espessura do isolante.

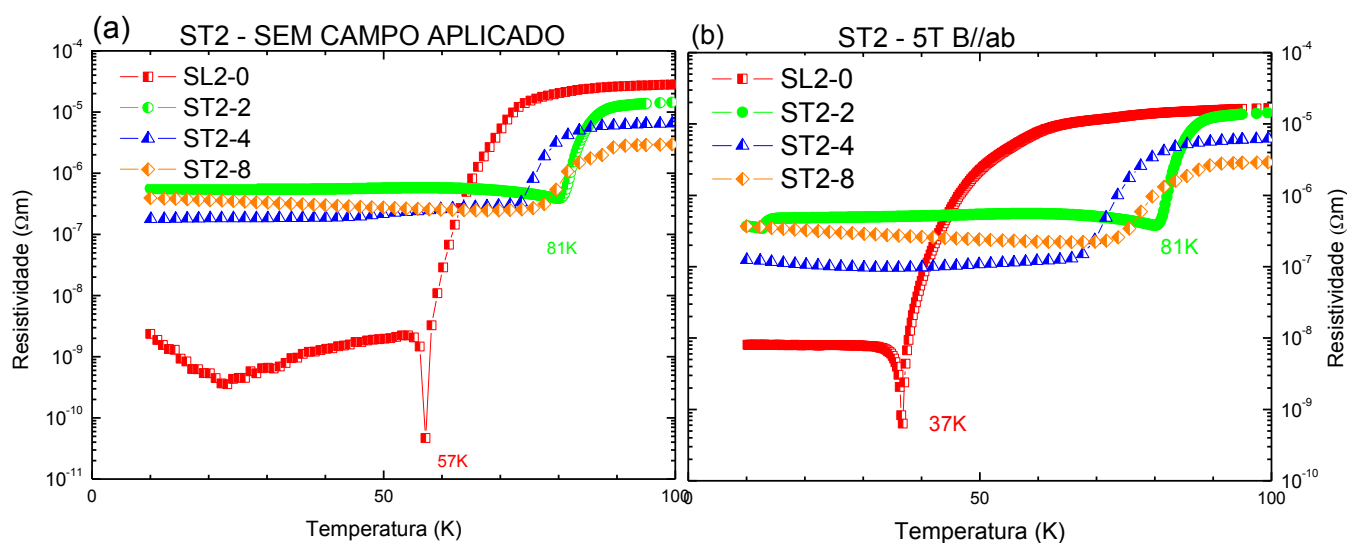


Figura 5.41: Medidas de transporte do 2º conjunto de amostras com STO (a) a campo zero e (b) com campo magnético de 5T aplicado paralelamente à superfície dos filmes finos. Os gráficos inseridos mostram a região acima de 60K em escala linear.

Os gráficos inseridos revelam, em torno de 200K, a transição metal-isolante (*MIT*) da camada de ferromagneto para a super-rede preparada sem isolante, SL2-0. Na super-rede ST2-2 pode-se supor que a curvatura encontrada entre 150K e 200K seja relacionada à esta transição. Porém, nenhuma curvatura é encontrada para ST2-4 e ST2-8.

Nestas super-redes a camada de LCMO é o dobro das do conjunto anterior, ou seja, as camadas de LCMO e YBCO são iguais, e espera-se que a visibilidade das propriedades do LCMO sejam maior, embora contrarie a conclusão de MALIK *et al.* (2012), para super-redes YBCO-LCMO com menos camadas e sem isolante.

A fim de melhor comparar as T_C^{onset} e T_C^{offset} , temperaturas de início e de final da transição supercondutora das amostras e as respectivas larguras ΔT , os valores obtidos nos gráficos foram listados na Tabela 5.1.

As larguras de transição supercondutora encontradas nestes gráficos estão coerentes com aquelas obtidas por medidas magnéticas (Figura 5.21). As primeiras apresentam ΔT um pouco menores por resultar de uma técnica de resposta mais rápida.

Os valores de T_C^{onset} são consistentes com a inserção do isolante de espessuras crescentes e não são particularmente sensíveis à aplicação do campo magnético de 5T aplicado paralelamente à superfície. O alargamento ocorre para quase todas as espessuras quando o campo é aplicado como consequência do deslocamento de T_C^{offset} . Uma exceção à estas observações deve ser feita à curva da amostra ST2-2, a qual apresentou T_C^{onset} relativamente alto para a menor espessura de isolante e manteve a largura da transição mesmo sob campo aplicado. Porém, esta super-rede apresenta também outras particularidades que podem estar relacionadas a uma espessura otimizada de isolante STO. Segundo FEDOSEEV *et al.* (2013), variação de até 2nm de STO na super-rede LCMO/STO pode produzir alterações no comportamento magnético e elétrico.

Cabe ainda ressaltar que todas amostras apresentam patamares de resistividade residual (*background*) após a transição supercondutora. A amostra sem isolante apenas o apresenta em nível duas ordens de grandeza mais baixo.

Tabela 5.1 – Temperaturas críticas (T_C^{onset} e T_C^{offset}) e largura de transição ΔT , extraídas dos gráficos de resistividade em função da temperatura do conjunto STO-2 de super-redes.

ST2	SEM CAMPO APLICADO			5T B//ab		
	T_C^{onset} (K)	T_C^{offset} (K)	ΔT (K)	T_C^{onset} (K)	T_C^{offset} (K)	ΔT (K)
AMOSTRA						
SL2-0	65	43	22	64	36	28
ST2-2	88	80	8	89	81	8
ST2-4	86	73	13	87	68	19
ST2-8	89	77	12	90	74	16

5.4.3 Super-redes (YBCO_{dS}/CE_{dI}/LCMO_{dF})₂₀ com d_S = 20nm e d_F = 20nm

O terceiro conjunto de amostras é referente às super-redes com camadas isoladas com CeO₂ de espessuras d_I = 2, 4, 8 e 16nm e camadas iguais de YBCO e LCMO, conforme descrito na Tabela 4.3.

Na Figura 5.42 são apresentadas as curvas de resistividade em função da temperatura levantadas (a) sem aplicação de campo e (b) sob campo de 5T aplicado paralelamente à superfície. Nestas curvas aparece uma série de eventos que devem ser analisados separadamente.

Os vales em T_C^{offset} , semelhantes aos observados para SL2-0 e ST2-2, estão presentes para quase todas as super-redes. A exceção é a CE16, cuja espessura pode ser suficiente para bloquear o mecanismo de criação de vales. Entretanto, um *background* mais alto – entre 10⁻¹² e 10⁻¹³ Ω.m - é observado para esta super-rede, mesmo na medida com campo aplicado. Esta verificação reforça a análise de que a corrente passa também pelas camadas não supercondutoras da super-rede. E esta linha de base corresponde a resistividade inserida por estas camadas, que neste caso específico da CE16, apresenta uma seção transversal dobrada de isolante com relação a espessura anterior. Ao observar o *background* da SL2-0 percebe-se um nível muito mais baixo de resistividade, embora existente, que corresponderia somente à camada resistiva LCMO.

Um caso peculiar é a curva da amostra CE8 na qual, além do vale no T_C^{offset} em 84K, outro vale a 64,3K, envolvendo três ordens de grandeza, é claramente observado. Em temperatura bem menor, 17K, um outro vale se encontra apenas esboçado. Estes vales devem resultar de um tipo de estímulo diferente daqueles que ocorrem em T_C^{offset} .

A arquitetura da super-rede CE4 parece ser bastante estável e uniforme com relação à distribuição de cargas. O campo aplicado de 5T praticamente não interagiu com os parâmetros da curva de resistividade (veja Tabela 5.2).

A amostra CE2 é a mais instável entre as super-redes e apresenta diversos vales após a transição que ocorre em temperatura mais baixa que as outras

amostras quando a medida é feita sem campo aplicado. Esta curva sob campo magnético ficou prejudicada por problemas experimentais, como por exemplo a sua deposição, mas indicou um deslocamento da transição para mais altas temperaturas seguido de crescimento da resistividade para patamar bem mais alto. Tudo indica que esta amostra não tem estrutura perfeita e por isso apresenta instabilidades nas medidas.

Quanto ao efeito do campo sobre a amostra CE16, esta foi a que apresentou o maior alargamento da transição em virtude do decréscimo significativo de T_C^{offset} . Este tipo de comportamento é observado normalmente para filmes de YBCO individuais, o que indicaria que a espessura de 16nm é pelo menos suficiente para o desacoplamento da corrente efetiva que passa pela super-rede.

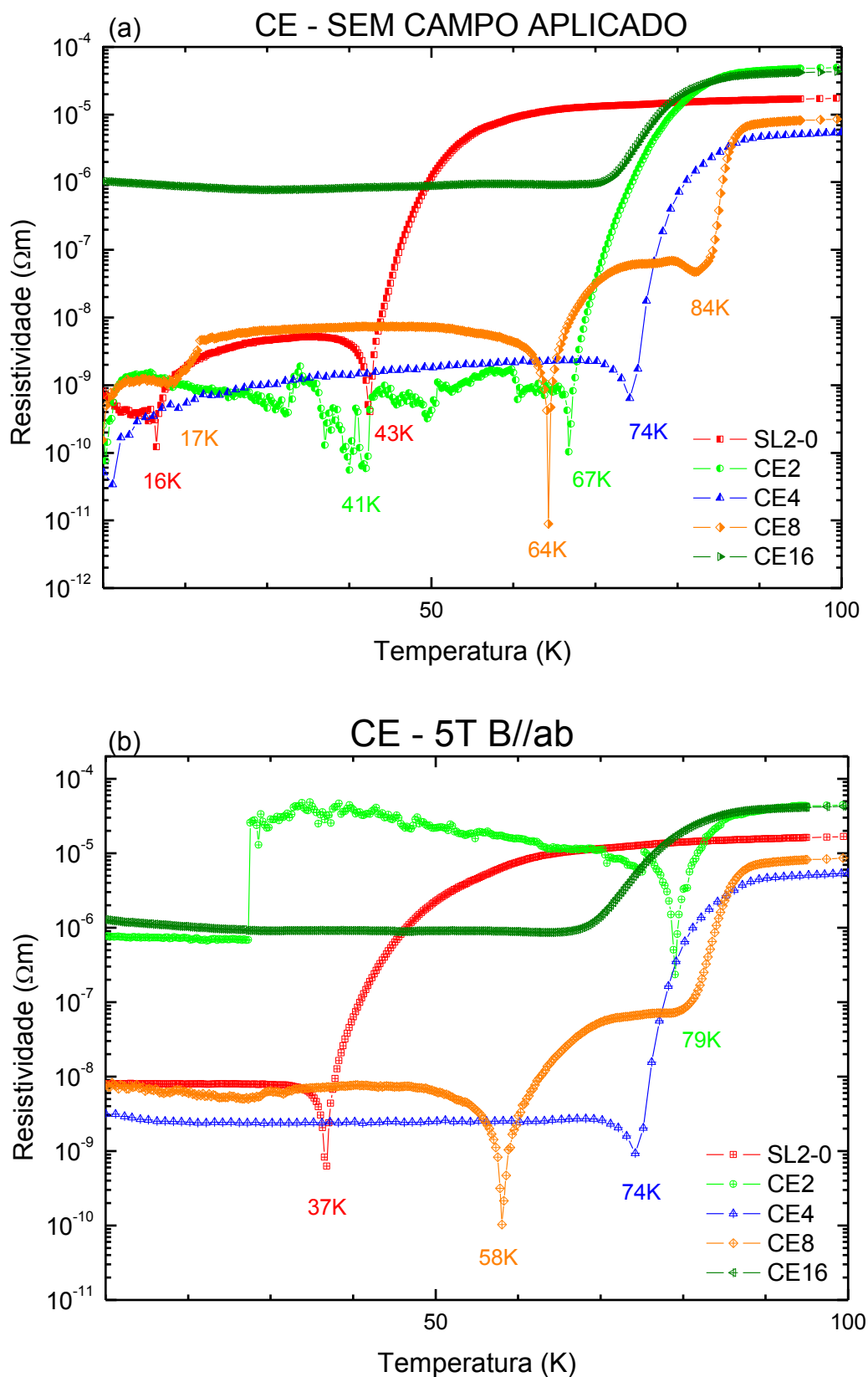


Figura 5.42: Curvas de resistividade em função da temperatura para amostras com diversas espessuras de isolante CeO_2 , (a) sem campo aplicado e (b) sob campo de 5T aplicado paralelamente à superfície.

Tabela 5.2 – Temperaturas críticas (T_C^{onset} e T_C^{offset}) e largura de transição ΔT , extraídas dos gráficos de resistividade em função da temperatura do conjunto CE de super-redes.

CE	SEM CAMPO APLICADO			5T B//ab		
AMOSTRA	T_C^{onset} (K)	T_C^{offset} (K)	ΔT (K)	T_C^{onset} (K)	T_C^{offset} (K)	ΔT (K)
SL2-0	65	43	22	64	36	28
CE2	83	67	16	86	79	7
CE4	86	74	12	86	74	12
CE8	89	84	5	87	80	7
CE16	81	72	9	83	68	15

As Figuras 5.43(a) e (b) mostram as curvas obtidas para os mesmos dados acima traçados em eixos lineares. Nelas é possível observar o indicativo de transição metal-isolante na região de 200K para a amostra ST2-0, como já comentado, e para CE16. Nas outras super-redes não foi possível encontrar indícios desta transição. A atuação da camada isolante também parece estar relacionada à falta da transição MIT.

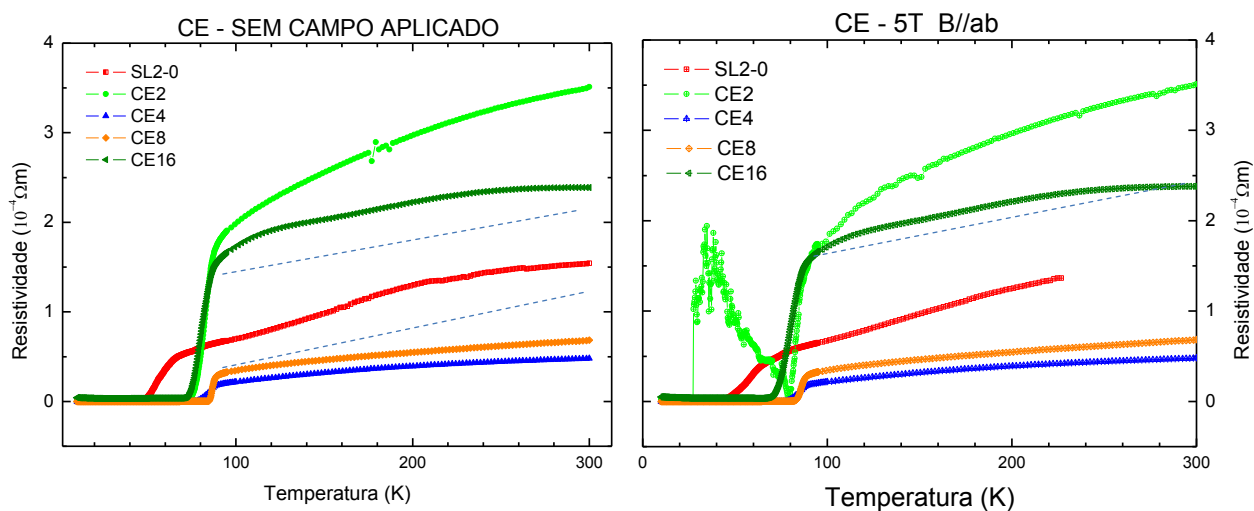


Figura 5.43: Curvas de resistividade em função da temperatura traçadas em eixos lineares para amostras com diversas espessuras de isolante CeO_2 , (a) sem campo aplicado e (b) com campo de 5T aplicado paralelamente à superfície. As linhas tracejadas são guias visuais para observação da MIT.

Dentre os isolantes testados o óxido de cério é o que possui estrutura cristalina menos compatível com a do YBCO e do LCMO. O que dá origem a defeitos estruturais no crescimento das super-redes como foi observado por microscopia eletrônica de varredura. Tais defeitos geram tensões entre as camadas que podem ser liberadas ao longo do aquecimento durante as medidas e de alguma forma disparar um mecanismo responsável por estes vales.

Existe a hipótese, que será detalhada mais a frente, de que os vales correspondem a descargas elétricas represadas entre as camadas isolantes, que podem ser liberadas dependendo de tensões em alguma das estruturas cristalinas, transições estruturais destes isolantes, da temperatura em que se encontram, ou do campo magnético aplicado. A transição supercondutora também pode ser uma condição favorável à ocorrência do vale, sendo de conhecimento geral que próximo de transições os parâmetros de controle variam drasticamente produzindo desequilíbrios e instabilidades. (DOBROSAVLJEVIC, 2011)

5.4.4 Super-redes (YBCO_{dS}/PB_{dI}/LCMO_{dF})₂₀ com d_S = 20nm e d_F = 20nm

O quarto conjunto de amostras é referente às super-redes com isolante PrBa₂Cu₃O_{6+δ}, com espessuras d_I = 0,5, 2, 4, 8 e 20nm, com camadas iguais de YBCO e LCMO, como descrito na Tabela 4.4.

Os dados de temperatura de transição supercondutora e largura da transição obtidos a partir dos gráficos de resistividade são listados na Tabela 5.3. As temperaturas T_C^{onset} das super-redes com espessuras de isolante igual a 2, 4, 8 e 20nm são as mais altas observadas dentre todas as testadas neste trabalho, ficando entre 88K e 90K mesmo sob campo de 5T. As larguras de transição também foram as mais estreitas observadas e ficou entre 2K e 4K, com exceção da largura da transição da amostra PB2 que sob aplicação de campo mudou para 10K.

Entretanto, neste conjunto foi preparada também uma camada ainda mais fina, a PB1/2, com espessura de PBCO de 0,5nm, que apresentou T_C^{onset} de 77K sem campo aplicado. Mas sofreu alteração de sua largura de transição, chegando a quase o dobro, quando submetida ao campo de 5T. Esta super-rede se comportou

semelhantemente à amostra SL2-0, no sentido da ocorrência dos vales em T_C^{offset} , mas apresentou T_C muito mais alto (veja Figura 5.44). Outra similaridade encontrada entre estas super-redes foi a transição metal-isolante MIT do LCMO em torno de 200K, observada apenas para esta camada de isolante.

Tabela 5.3 – Temperaturas críticas (T_C^{onset} e T_C^{offset}) e largura de transição ΔT , extraídas dos gráficos de resistividade em função da temperatura do conjunto PBCO de super-redes.

PBCO	SEM CAMPO APLICADO			5T B//ab		
AMOSTRA	T_C^{onset} (K)	T_C^{offset} (K)	ΔT (K)	T_C^{onset} (K)	T_C^{offset} (K)	ΔT (K)
SL2-0	65	43	22	64	36	28
PB1/2	77	64	13	80	58	22
PB2	89	85	4	90	80	10
PB4	89	86	3	89	86	3
PB8	88	86	3	88	86	3
PB20	90	88	2	88	84	4

A Figura 5.44 mostra a evolução das curvas com a espessura de isolante apenas para as amostras mais finas de PBCO, no qual observa-se o vale em T_C^{offset} se deslocar para temperaturas mais altas à medida que o isolante é inserido e sua espessura aumenta de 0,5 para 2nm. O salto é de praticamente 20K para cada etapa. O limite deste processo já é alcançado na espessura de 2nm de PBCO. Não há possibilidade de avanço em T_C acima de 89-90K para espessuras maiores de isolante PBCO.

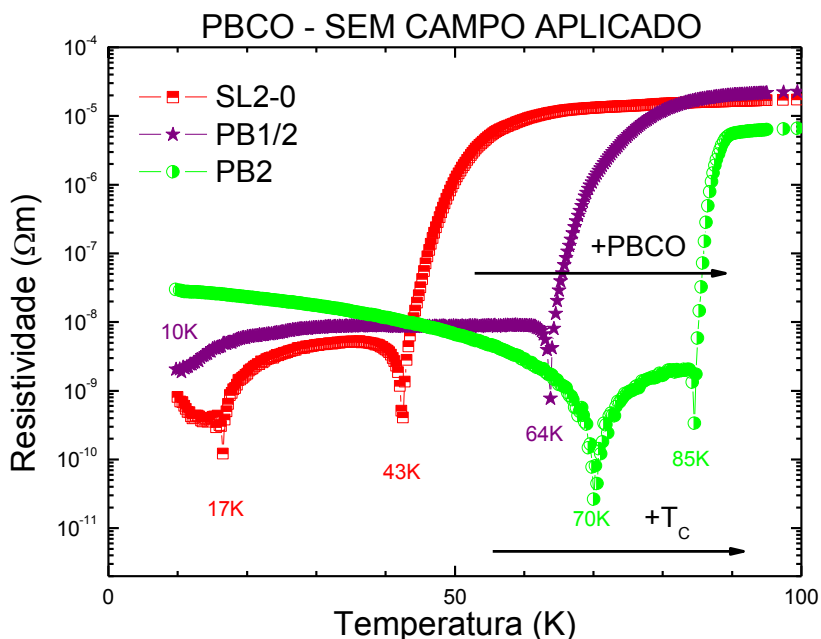


Figura 5.44: Medidas de resistividade em função da temperatura das super-redes SL2-0, PB1/2 e PB2. Com o aumento da espessura do PBCO entre as camadas YBCO e LCMO, aumentou-se também a T_C , como indicado.

Super-redes com espessura de YBCO maior ou menor do que a de LCMO, como as estudadas por MALIK *et al.* (2012): $(\text{YBCO}_{5\text{nm}}/\text{LCMO}_{4,32\text{nm}}) \times 10$ e $(\text{YBCO}_{3,75\text{nm}}/\text{LCMO}_{4,32\text{nm}}) \times 10$, apresentaram T_C de apenas 34K e 53K, respectivamente. Portanto, os resultados de T_C obtidos neste trabalho são importantes pois afirmam em primeiro lugar que a inserção de camadas de material isolante entre camadas iguais de YBCO e LCMO normaliza a 90K a temperatura crítica da super-rede. Em segundo lugar, mostra que esta inserção de isolante SrTiO_3 (STO) ou CeO_2 (CE) deve ser com camada de cerca de 8nm (veja T_C^{onset} das Tabelas 5.1 e 5.2) ou de apenas 2nm quando o isolante inserido é o $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$.

Os gráficos da Figura 5.45 ilustram as curvas de resistividade em função da temperatura para cada super-rede, sem campo aplicado e sob campo de 5T aplicado na direção paralela à superfície dos filmes.

Em relação às curvas de PB1/2, PB2, PB4 e PB8, nota-se a presença do vale que ocorre em T_C^{offset} , assim como nas amostras SL2-0, ST2-2, CE2, CE4, e CE8. Mas, além disso, a inserção da camada de PBCO favoreceu a ocorrência do segundo vale ocorrido em temperatura muito abaixo da transição que é vista em CE8.

Este tipo de vale também foi observado em super-redes de LCMO/STO, onde não há camada de material supercondutor (FEDOSEEV *et al.*, 2013). Para este material foi proposto um modelo, o qual iremos considerar para nossos resultados.

Observando as curvas das amostras PB2, PB4 e PB8, é possível ainda notar a presença constante do vale a cerca de 70K, sempre com a mesma forma. Estes experimentos eliminam a possibilidade de que tais vales sejam espúrios uma vez que foram observados em diversas amostras.

Um processo de evolução em função do crescimento da camada de PBCO também é observado nas curvas da Figura 5.45. E este é o progressivo decréscimo do vale de resistividade em T_C^{offset} quando a espessura da camada de PBCO cresce de 4nm para 8nm. Na curva de PB8 este vale desaparece para dar lugar a apenas um degrau em T_C^{offset} .

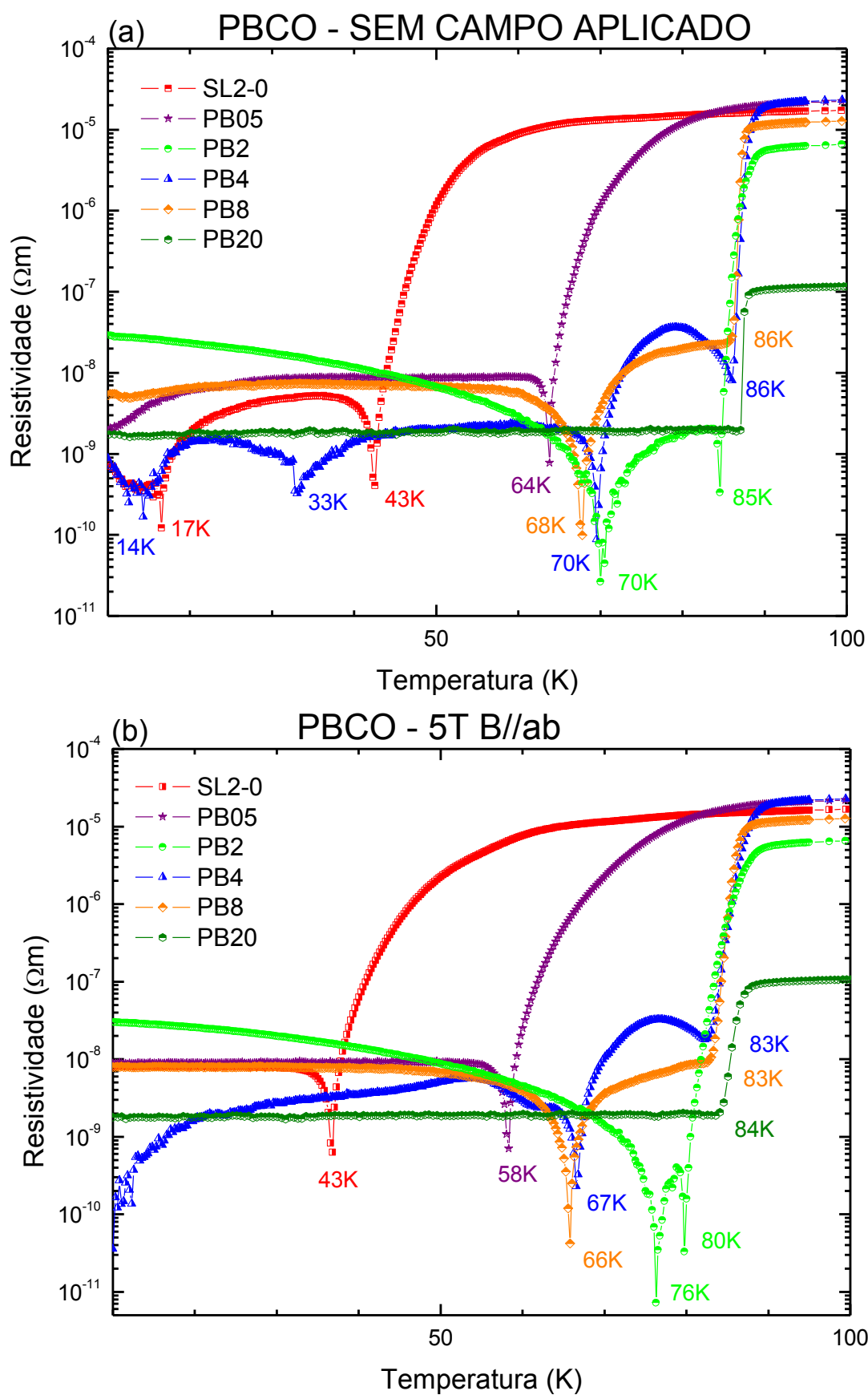


Figura 5.51: Curvas de resistividade em função da temperatura para amostras com diversas espessuras do isolante $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$, (a) sem campo aplicado e (b) sob campo de 5T aplicado paralelamente à superfície.

Ainda observando a Figura 5.45 nota-se que a super-rede PB20, com uma camada de isolante de espessura comparável às camadas supercondutora e ferromagnética, praticamente não é afetada pelo campo magnético aplicado. Vale ainda destacar a baixa resistividade desta amostra em temperaturas acima de T_c , cuja grandeza é duas ordens abaixo das outras amostras do conjunto. Porém, o *background* está presente de maneira comparável às outras amostras.

Em relação às medidas realizadas sob campo de 5T, houveram algumas respostas adversas. Uma delas é a eliminação do vale a 33K e deslocamento para mais baixas temperaturas dos vales iniciais da amostra PB4. Este tipo de efeito de campo foi visto anteriormente (SL2-0, CE4 e CE8) eliminando vales de baixas intensidades em bem baixas temperaturas. Mais dois tipos de interações com o campo magnético são observados para a amostra PB2, que sofre alargamento da transição abaixando para 80K o vale em T_c^{offset} , enquanto o vale posicionado anteriormente em 70K sobe 6K com a aplicação do campo.

Ainda não foi possível esclarecer a razão pela qual a aplicação de campo magnético evita a ocorrência dos vales de baixa temperatura. Contudo, estes vales correspondem a descargas de potencial elétrico acumulado nas camadas de isolante da super-rede, o campo magnético aplicado seria o responsável pelo aumento da rigidez dielétrica destas camadas impedindo o rompimento e passagem da descarga. (FEDOSEEV et al., 2013)

Sendo a camada de PBCO um fator determinante das propriedades deste conjunto, apresenta-se a seguir alguns dados extras de experimentos realizados com este material com o intuito de se observar o comportamento da resistividade de camadas semelhantes na ausência do supercondutor. Na Figura 5.46, por exemplo, são traçados dados de resistividade em função de temperatura da super-rede (LCMO_{20nm}/PBCO_{8nm})₂₀, na qual a unidade seria comparável àquela da arquitetura da PB8 (sem YBCO). Para ambas as situações de aplicação ou não de campo na direção paralela à superfície da super-rede, nota-se que a resistência cresce drasticamente enquanto a temperatura segue de 10 a 20K, e após uma etapa estabilizada até aproximadamente 30K, a resistência cai abruptamente até atingir estabilidade de isolante elétrico entre 50 e 60K..

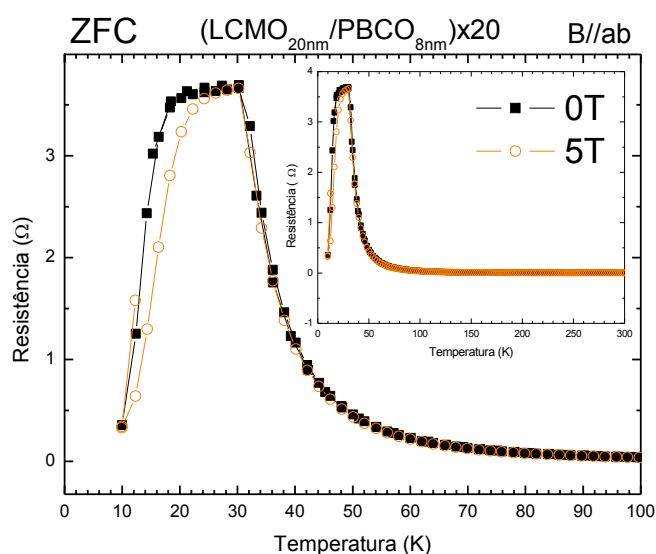


Figura 5.46: Resistência em função da temperatura para a super-rede $(\text{LCMO}_{20\text{nm}}/\text{PBCO}_{8\text{nm}})_{20}$ comparável à amostra PB8 sem a camada de YBCO, sem e sob campo magnético de 5T aplicado paralelamente à superfície do filme.

Ainda sobre o PBCO, esta é uma perovskita também pertencente ao grupo dos supercondutores $(\text{RE})\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, onde RE são as terras raras. Porém, esta é a única perovskita do grupo de terras raras, que não apresenta o fenômeno da supercondutividade devido a limitações na síntese, tornando-se apenas um material isolante (YOUNSI *et al.*, 2012). Ainda segundo o mesmo autor, a estequiometria do PBCO é bastante estável, porém, muito sensível à dopagem, contaminação ou substituição. A ocorrência de comportamento antiferromagnético pode indicar uma troca magnética Pr-Pr e forte hibridização entre os orbitais $2p\text{-O}$ e $4f\text{-Pr}$. O Pr elementar é um material antiferromagnético com Temperatura de Néel, $T_N = 9\text{-}10\text{K}$.

5.4.5 Análise comparativa do modelo proposto por FEDOSEEV *et al.*, (2013)

Ao longo deste capítulo foram descritos dois tipos de vales encontrados nas curvas das super-redes estudadas. O primeiro foi referido como vale em T_C^{offset} , que foi observado nas curvas das amostras SL2-0, ST2-2, CE2, CE4, e CE8, PB1/2, PB2, PB4 e PB8, e que estão relacionados à transição supercondutora. Sendo a própria transição um fator determinante para a sua ocorrência em virtude de

instabilidades que acompanham o fenômeno de supercondutividade. (DOBROSAVLJEVIC, 2011)

Em nosso trabalho, na região abaixo de T_C^{offset} , foram observados também um vale em temperaturas próxima de 70K e um outro vale em temperatura bem mais abaixo. Estes foram encontrados nas amostras CE8, PB2, PB4 e PB8. Este tipo de vale, sem relação direta com a transição supercondutora, foi observado anteriormente em super-redes de $(\text{LCMO}_{3\text{nm}}/\text{STO}_{3\text{nm}})_{30}$ crescidas em substrato de LAO por FEDOSEEV *et al.* (2013). E em trabalho publicado recentemente, embora não tenha esclarecido completamente a sua existência, o autor propôs uma representação prática de circuito RC em analogia a um modelo baseado num sistema de fases separadas com propriedades diferenciadas. Este modelo justificaria os vales e o *background* também observado entre eles. De acordo com o autor, o comportamento dos vales depende da arquitetura das super-redes e dos parâmetros de deposição, inclusive do tipo de substrato. Entretanto, o procedimento de deposição idêntico produz comportamentos idênticos, o que é essencial para o design de dispositivos. O modelo de separação de fase (PS – *Phase Separation*) é apropriada para o LCMO, visto que as fases metálica e isolante, de escala nanométrica, foram observadas coexistir mesmo abaixo da temperatura de Curie. (DÖRR *et al.*, 2000) (NAGAEV, 1998) O autor acrescenta que o LCMO possui propriedades não usuais como resistência não linear e metaestabilidade. Mas o modelo PS também é adequado para um sistema bem ordenado de estruturas 3D alternadas por fases ferromagnética e isolante como no caso das multicamadas.

As curvas de resistividade obtidas para aquela super-rede são mostradas na Figura 5.47. Duas das singularidades foram observadas na curva da resistividade abaixo da temperatura da transição metal-isolante do ferromagneto. O autor observou que a queda destes vales correspondeu a até 2 ordens de magnitude tanto para as medidas sem campo como sob campo magnético aplicado de 5T. Comentase ainda que a existência destes vales naquelas posições e com aquelas intensidades foi observada consistente e independentemente da taxa de variação de temperatura e dos ciclos de resfriamento e aquecimento. Porém, não foram observados para super-redes com camadas mais espessas de STO e tendo um maior número de camadas.

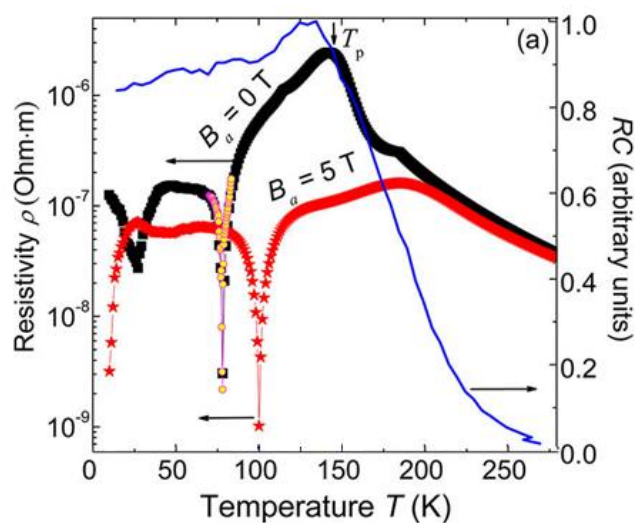


Figura 5.47: Resistividade em função da temperatura de super-rede $(\text{LCMO}_{3\text{nm}}/\text{STO}_{3\text{nm}})_{30}$ depositada sobre LAO medida em campo nulo e de 5T paralelamente à superfície da super-rede. A linha sólida exibe a dependência do circuito RC idealizado sobre a temperatura. Os círculos abertos sobrepostos mostram a reprodutibilidade das curvas pela medida realizada em passos menores. (FEDOSEEV *et al.*, 2013).

A análise feita por FEDOSEEV *et al.* (2013), para justificar os vales, parte de um modelo de separação de fases identificadas com cada uma das camadas da super-rede, isolante e ferromagnética, ordenadas sequencialmente (com condutividade na estrutura 3D) e um domínio plano (com condutividade na estrutura 2D) onde as fases são identificadas dentro da camada LCMO.

Segundo o autor, no modelo PS a concentração dos portadores de carga nos domínios afeta as propriedades magnéticas local e global da super-rede (NIGAM;PAN;DOU, 2008) devido a troca de spin efetivo que é feita por meio de diversos mecanismos possíveis como dupla troca, salto de portadores, distorção de rede, etc. (SEN;ALVAREZ;DAGOTTO, 2010). Acima da transição metal-isolante (T_p), as fases isolantes ordenadas por spin-carga criam barreiras de potencial entre os domínios da fase ferromagnética. A carga mútua destas fases, devido ao aumento da concentração de portadores, acaba elevando os campos Coulombianos. A elevação dos campos, provoca a expansão das regiões de condução que eventualmente percolam conduzindo abaixo da transição MIT. Este fato não destrói a separação das fases, mas muda a sua topologia, mesmo dentro da fase LCMO. As barreiras múltiplas de potencial, como é o caso das camadas da super-rede,

normalmente são dependentes da temperatura e do campo aplicado, que desempenham importantes papéis no progressivo colapso destes potenciais.

No gráfico da Figura 5.47 o vale de mais baixa temperatura é mais largo que o de alta temperatura. Com a aplicação de campo o primeiro desloca para mais baixas temperaturas, mas o mais estreito segue no sentido contrário. O autor observa também que o background não muda significativamente entre os vales, sugerindo o restabelecimento do mecanismo de condutividade.

Estes potenciais Coulombianos experimentam progressivas quedas, dentro da faixa de temperatura dos vales, à medida que a temperatura varia. Desta forma, ao invés de haver o tunelamento normal observado para temperaturas acima da transição, as regiões ferromagnéticas vizinhas tornam-se eletricamente conectadas, o que corresponderia a uma queda progressiva da resistividade do material como um todo. Após os potenciais descarregarem através de toda a super-rede, as barreiras isolantes se reinstalam levando a resistividade ao nível maior de condutividade percolada determinada por tunelamento (*background*). Ambos os vales são descritos como tendo o mesmo cenário de desenvolvimento, mas o vale mais estreito deve ter também a contribuição do rompimento da barreira entre as camadas devido a formação de um filamento condutor (linhas que atravessam a camada isolante na Figura 5.48).

Um modelo de circuito 3D baseado em capacitores e resistores (RC) é proposto pelo autor para ilustrar o modelo, no qual as camadas isolantes (STO) são intercaladas por camadas resistivas (LCMO), de comportamento não linear e dependentes da temperatura, formando capacitores (Figura 5.48). As características do capacitor dependem das propriedades dielétricas do isolante (STO), os quais, por sua vez, dependem da temperatura e da intensidade do campo elétrico. Este modelo é dito ser válido para camadas de STO tão finas quanto 0,8nm, pois possuem ainda boas propriedades isolantes. De acordo com este modelo, na exata temperatura do vale de resistividade todos os capacitores atribuídos às camadas STO devem ser substituídos por filamentos condutores de corrente.

Outros capacitores são ainda atribuídos para os contornos dos domínios magnéticos dentro do ferromagneto. O comportamento destes capacitores no plano

do LCMO são tidos como governados pelo vale que responde melhor ao campo aplicado, o vale de menor temperatura da Figura 5.47. Quando um campo magnético é aplicado paralelamente ao plano LCMO, os domínios são obrigados a se alinhar ao longo do campo. Desta forma, domínios vizinhos são unidos decrescendo em número mas crescendo em tamanho. Este fato levaria a (i) um processo de ruptura mais rápida dos capacitores, (ii) que ocorreria em mais baixa temperatura e (iii) que resultaria em resistência menor para o mínimo deste vale (menos contornos de domínios para serem rompidos). O que de fato é observado para estas três características no experimento reportado.

As super-redes de LCMO/ISOLANTE/YBCO estudadas neste trabalho podem ser consideradas como tendo arquiteturas semelhantes, onde, porém, a camada de LCMO é substituída alternadamente por camada de YBCO, camada condutora mas minimamente resistiva devido a defeitos resultantes do crescimento imperfeito, como a adaptação feita na Figura 5.49. Deve-se ainda considerar que as espessuras das camadas de ferromagneto, e de supercondutor, são cerca de 7 vezes maiores que aquelas do trabalho citado acima. Entretanto, a presença e o comportamento semelhante aos encontrados por FEDOSEEV *et al.* (2013) foram de fato observados aqui nos vales para o isolante CE com 8nm de espessura e para o isolante PBCO com espessuras de 2, 4 e 8 nm.

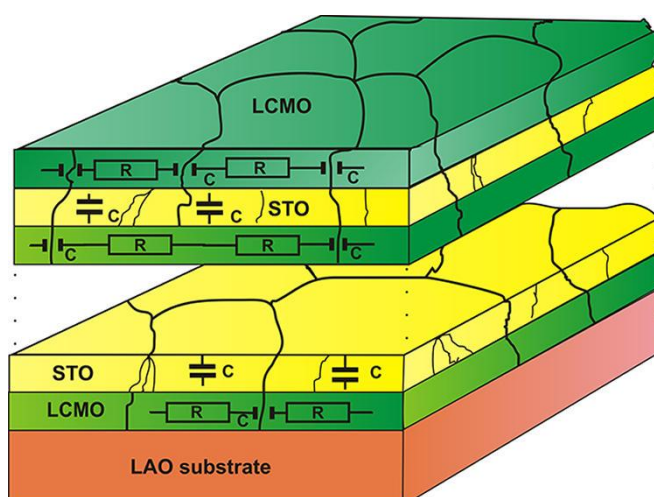


Figura 5.48: Modelo da super-rede LCMO/STO como circuito RC em três dimensões. As linhas que atravessam as camadas de STO são caminhos de condução entre camadas de LCMO (curto-circuito) quando ocorrem os vales de resistividade. (FEDOSEEV *et al.*, 2013)

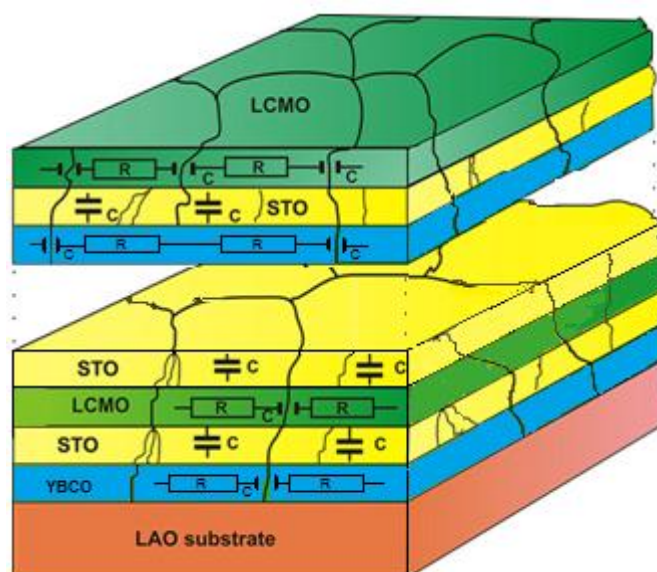


Figura 5.49: Modelo da super-rede LCMO/STO como circuito RC em três dimensões. As linhas que atravessam as camadas de STO são caminhos de condução entre camadas de LCMO (curto-circuito) quando ocorrem os vales de resistividade. (Adaptada FEDOSEEV et al., 2013)

5.3.6 Magnetoresistência das super-redes

Os dados apresentados a seguir mostrarão as configurações que se mostraram adequadas para a observação da magnetoresistência colossal (CMR), fenômeno que foi registrado para diversas super-redes aqui estudadas.

A magnetoresistência (MR) foi obtida subtraindo a curva de resistividade a 5T da curva obtida a campo nulo. Como referência foi usada a curva em campo nulo. Segue a expressão usada:

$$MR = \frac{(\rho_{5T} - \rho_{0T})}{\rho_{0T}} \times 100\% \quad (5.1)$$

Onde, ρ_{5T} é a resistividade à 5T e ρ_{0T} é a resistividade à 0T.

A MR em super-redes tem se apresentado em pequenas regiões de temperatura, gerando picos. As curvas MR(T) do conjunto STO1 de super-redes são plotadas na Figura 5.50. As posições dos picos com os respectivos percentuais de ampliação são listados no quadro ao lado da figura. O maior efeito de MR foi observado para a super-rede sem isolante, a ST1-0. Porém a ST1-4 apresentou um pico em posição e intensidade comparáveis.

Segundo CHAHARA *et al.* (1992), o filme fino de YBCO não apresenta magnetoresistência, e o filme fino de LCMO apresenta magnetoresistência negativa. Segundo este autor, a *tri-layer* LCMO/YBCO/LCMO apresenta MR quando a espessura da camada de YBCO não excede o dobro da espessura da camada de LCMO. Entretanto, para o caso da *tri-layer* LCMO_{1500Å}/YBCO_{3000Å}/LCMO_{1500Å}, não foi observado magnetoresistência.

A magnetoresistência também foi observada em super-redes LCMO/STO, quando foi relacionado à transição dimensional das propriedades de transporte spin-carga. (FEDOSEEV *et al.*, 2013)

Em vista dos dados da literatura, supõe-se que os efeitos registrados nas super-redes STO1, tiveram origem na interação YBCO-LCMO dentro do alcance de 8nm ou na LCMO-STO, na proximidade das camadas.

A Figura 5.51 apresenta a MR para as amostras ST2, onde as camadas YBCO e LCMO foram equilibradas. Neste conjunto cinco picos foram encontrados e listados no quadro ao lado da figura. Os picos para as amostras com 4 e 8nm de STO são de muito baixa intensidade. Apenas a ST2-2 não mostrou pico visível de MR, indicando que a resistividade encontrada para esta amostra não depende do campo aplicado.

Por outro lado a SL2-0 apresentou dois picos de MR, que coincidem com os vales de resistividade ocorridos nas medidas elétricas. Um deles, em 43K apresentou grande intensidade de magnetoresistência que pode ser denominada de magnetoresistência colossal. Segundo FEDOSEEV *et al.* (2013), valores de magnetoresistência acima de 10000% são chamados de magnetoresistência colossal.

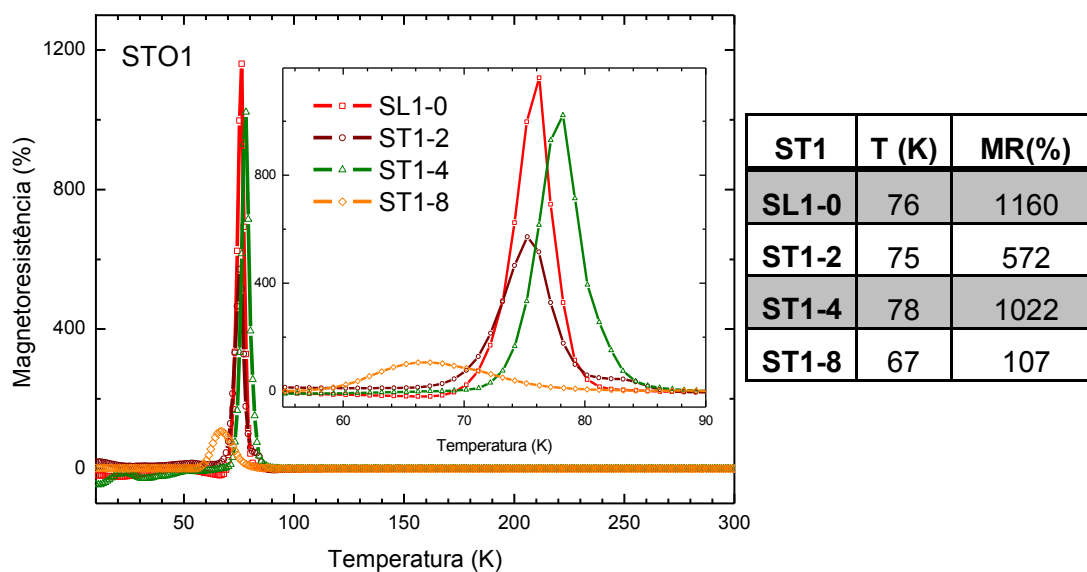


Figura 5.50: Picos de magnetoresistência encontrados para o conjunto de super-redes STO1. Inserção: ampliação da escala entre 60 e 90K.

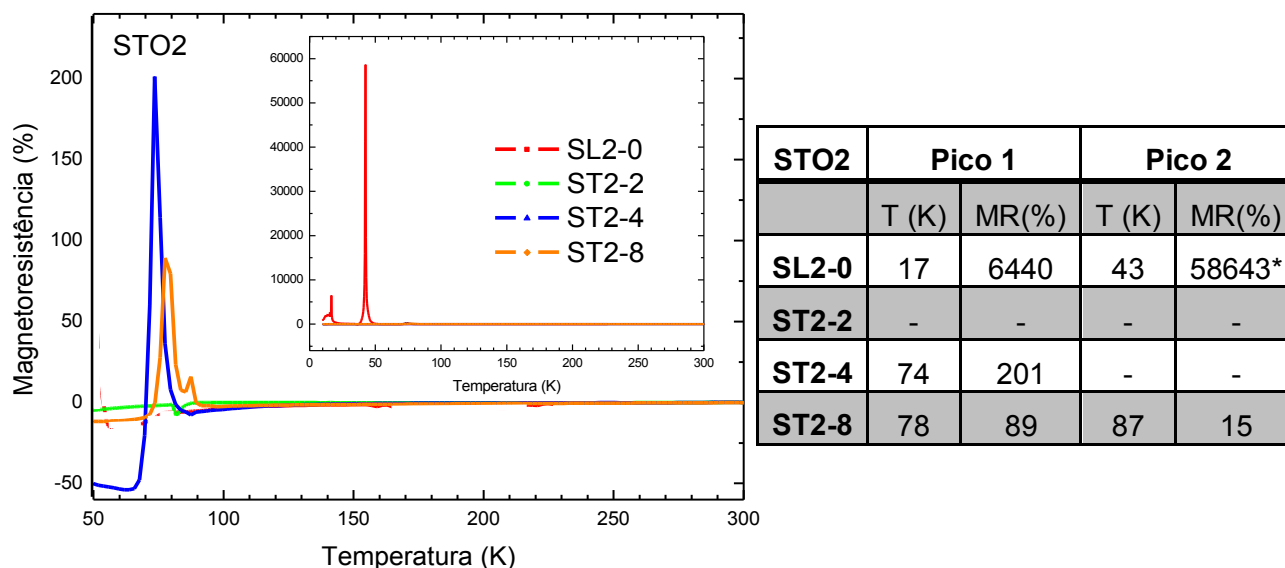


Figura 5.51: Magnetoresistência em função da temperatura das super-redes STO2. Inserção: alteração das escalas para melhor visualização dos picos. * Indica CMR.

As curvas MR das amostras CE são apresentadas na Figura 5.52. As super-redes preparadas com camada de CeO_2 apresentaram quatro picos de magnetoresistência. Os picos observados para CE8 correspondem aos vales de resistividade observados para esta amostra. Um deles localizado em 64K foi caracterizado como pico CMR. Além da alta MR, percebe-se também quão estreito é este pico, característica que pode gerar aplicações na eletrônica (FEDOSEEV *et al.*, 2013).

Os outros picos observados para CE4 e CE16 são de intensidade menor, sendo um deles relativo a um pico invertido ocorrido a 11K para a amostra CE4.

Não foi possível traçar a MR da super-rede CE2, devido a enorme quantidade de ruídos existente em ambas as curvas de resistividade (Figuras 5.42 e 5.43).

Vários destaques são encontrados no conjunto com isolante de PBCO, como mostra a Figura 5.53. Talvez o mais importante seja o registro de pico a 85K com MR de 115192% (CMR) para a super-rede PB2, posição que corresponde ao vale T_C^{offset} no gráfico de resistividade. O segundo pico de MR da PB2 possui intensidade menor, mas corresponde ao vale da resistividade em 70K.

As amostras PB4 e PB8 também registraram CMR em temperaturas de 86K, posição dos vales T_C^{offset} destas super-redes. Semelhantemente foi observado para a PB1/2 a CMR com 37241%, na temperatura de 64K.

As outras amostras apresentaram também MR, porém com intensidades mais baixas, inclusive a super-rede PB20 a qual mostrou um comportamento supercondutor padrão e pouco mutável sob campo magnético aplicado.

Em resumo, as MR de maior intensidade coincidem com os vales T_C^{offset} , que estão vinculados à influencia temperatura do final da transição supercondutora da camada YBCO. Diversos foram os picos em torno de 70K, região próxima da temperatura para a qual FEDOSEEV *et al.* (2013) observou o mesmo fenômeno para super-redes YBCO/LCMO, isto é, em torno de 75K. Sistema este para o qual o autor propôs o modelo de duas fases estruturadas em multicamadas resistiva e isolante, através da qual uma descarga de potencial é liberado quando ultrapassa um

determinado valor que é governado principalmente pela dinâmica de temperatura e campo magnético a qual a super-rede está submetida.

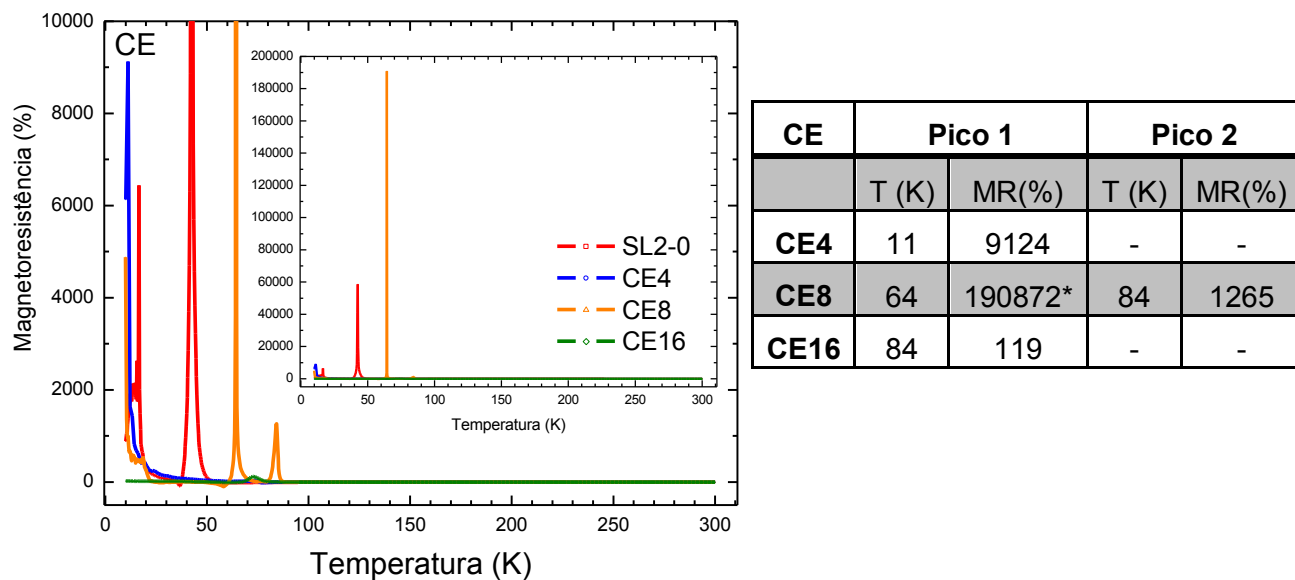


Figura 5.52: Magnetoresistência em função da temperatura das super-redes CE. Inserção: alteração das escalas para melhor visualização dos picos. * Indica CMR.

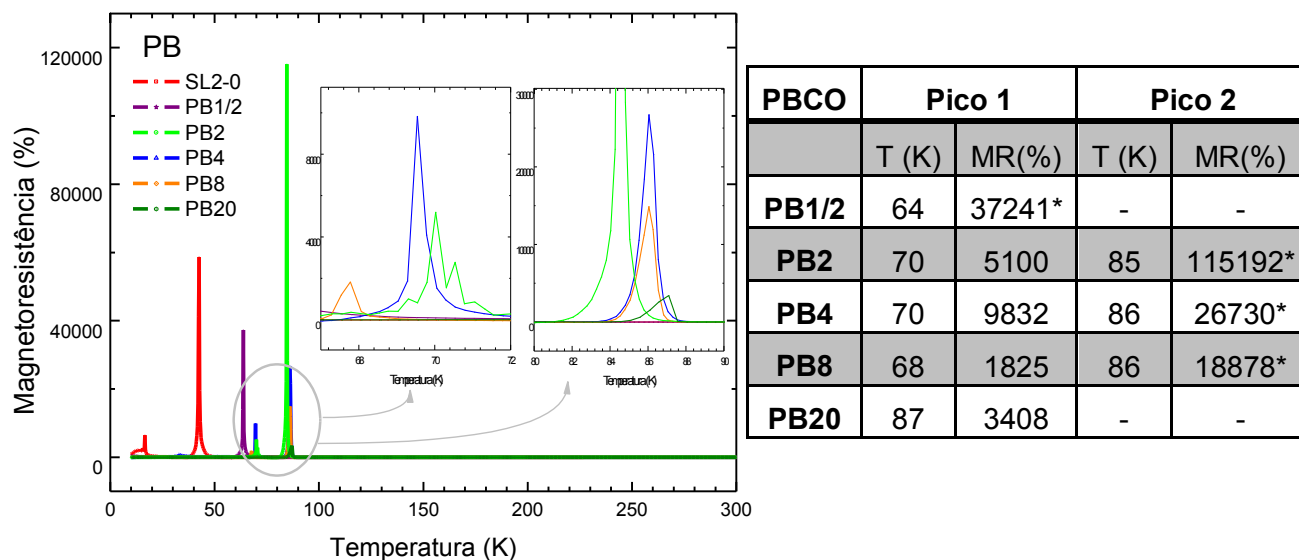


Figura 5.53: Magnetoresistência em função da temperatura do 4º conjunto de amostras, com isolante PBCO. Inserção: altera a escala para melhor visualizar os picos: (1)85K, (2)43K, (3)64K, (4)86K, (5) 86K, (6)17K, (7) 70K, (8) 70K, (9)68K e (10)87K.

6. CONCLUSÕES

Super-redes $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{ISO}_{\text{dl}}/\text{LCMO}_{10\text{nm}}/\text{ISO}_{\text{dl}})_{\times 20}$ (super-redes STO1) e $(\text{YBCO}_{20\text{nm}}/\text{ISO}_{\text{dl}}/\text{LCMO}_{20\text{nm}}/\text{ISO}_{\text{dl}})_{\times 20}$ foram preparadas com qualidade pelo método PLD utilizando substrato de LAO e camada *buffer* de STO. A camada isolante (ISO) inserida na super-rede entre as camadas YBCO e LCMO, apresentam uma variedade de fenômenos físicos. Além disso, mostrou-se também que a temperatura de transição supercondutora (T_C) e de Curie (T_{Curie}), assim como a magnetização e a resistividade residual podem ser influenciados por fatores externos às camadas SC e FM ou por arquitetura da super-rede, tais como os isolantes. Ou em outras palavras, a escolha do material isolante faz parte da modelagem das propriedades da super-rede, assim como a escolha das suas espessuras (*tuning*).

A qualidade das super-redes foi evidenciada por DRX, MEV e EDS, comprovando as heteroestruturas com interfaces claras, cristalinidade e crescimento epitaxial das camadas na direção (00ℓ) . Não foram detectadas fases secundárias.

A observação ao microscópio eletrônico de varredura revelou que a microestrutura da superfície da super-rede (LCMO) depende do material inserido visto que cada isolante tem seu parâmetro de rede. Os três isolantes testados mostraram elevada compatibilidade com as camadas de YBCO e LCMO, contudo o CeO_2 produz mais defeitos estruturais nas super-redes pois seus parâmetros de rede são mais discordantes.

Dados sobre as propriedades magnéticas e elétricas destas super-redes, resultantes da interação entre as camadas YBCO e LCMO separadas por camadas de material isolante, foram obtidos ineditamente para os isolantes STO, CeO_2 e PBCO com diversas espessuras. Algumas de suas propriedades foram testadas através de medidas magnéticas e de transporte.

As medidas magnéticas auxiliaram na verificação das propriedades magnéticas com a inserção de uma camada isolante entre as camadas YBCO e LCMO. A inserção de camadas isolantes favoreceram respostas magnéticas

diferenciadas, como por exemplo a amostra CE4, que possui uma camada de 4nm de CeO₂ entre as camadas YBCO/LCMO.

Considerando a T_C da amostra SL2-0 nos experimentos de magnetização, pode-se afirmar que o isolante preserva a transição supercondutora. A inserção da camada isolante na super-rede favorece o desacoplamento eletrônico entre as camadas YBCO e LCMO, reduzindo os efeitos de interface.

A J_C das super-redes foi fortemente reduzida quando comparada à amostra de YBCO com 400nm de espessura. Mas particularmente nestas super-redes, a J_C atingiu valores muito acima daqueles observados para *tri-layers* LCMO/STO/YBCO e super-redes YBCO/LCMO. A super-rede CE4 foi a única que exibiu J_C comparável a do filme de YBCO, o que torna esta espessura de CeO₂ a ideal para propriedades elétricas.

Todas as curvas de histerese realizadas a 100K mostraram comportamento típico de material paramagnético, sem histerese magnética, praticamente nula. E as curvas de histerese magnética determinadas a 10K exibiram dependência sobre as características do material isolante indicando a possibilidade de acoplamento das camadas YBCO e LCMO com o isolante.

Todas as super-redes testadas por medidas de transporte apresentaram transição de fase supercondutora em temperaturas próximas de 80K a 90K. Porém, nem todas apresentaram a transição metal-isolante ou a temperatura de Curie características do LCMO, quando submetidas a campo magnético. Consequentemente, é possível afirmar que a contribuição supercondutora pesou mais nas propriedades da super-rede do que a contribuição ferromagnética.

As super-redes do conjunto STO1 e STO2 não apresentam os vales de resistividade que estão presentes nas amostras com CeO₂ e PBCO. Considerando que estes vales abaixo da temperatura de transição (tanto T_C como MIT) foram observados em super-redes de LCMO/STO em temperaturas próximas das observadas no presente trabalho (FEDOSEEV *et al.*, 2013), pode-se supor que este comportamento é resultante da interação do isolante (STO, CE ou PB) com o LCMO, mas é fortemente dependente da espessura.

Como a CMRs foram observadas nas mesmas temperaturas dos vales de resistividade (aqueles abaixo de T_C), a mesma dependência deve ser considerada para estes fenômenos físicos.

Não houve um estudo detalhado em relação a inversão da sequência de deposição das camadas. Ou seja, a super-rede pode ter a deposição iniciando com o LCMO e terminar com o YBCO. Porém, medidas de histerese magnéticas realizadas a 100K, mostraram que esta inversão favorece o aumento da magnetização. O que pode estar vinculado à parâmetros estruturais, pois em se tratando de filme fino, a camada que está em contato com o substrato, neste caso com a *buffer*, exerce influências nas propriedades estruturais e conseqüentemente em outras propriedades.

O modelo de separação de fases (PS), conforme adaptação proposta para as super-redes de LCMO/STO/LCMO (FEDOSEEV *et al.*, 2013), pode ser compatibilizado com os resultados obtidos neste trabalho para as super-redes YBCO/ISOLANTE/LCMO. Na teoria esta compatibilização seria feita ao considerar a camada de supercondutor também resistiva, levemente resistiva, mesmo abaixo de T_C . Desta forma poderia-se englobar os dois casos em um tipo geral de super-rede MR1/ISOLANTE/MR2 onde MR1 seria o ferromagneto e MR2 seria o supercondutor, que teriam em comum a propriedade de um tipo de ordenamento de spins (contrários ou alinhados). Esta hipótese não é tão irreal quando lembramos da existência de um background de resistividade após T_C observado em todas as medidas elétricas das super-redes do presente trabalho.

Em conclusão, o presente trabalho, em lidando com os dados coletados em diversos experimentos para diversas arquiteturas de super-rede, pretende contribuir para o desenvolvimento de novos dispositivos baseados neste tipo de heteroestruturas formadas de supercondutores de alta temperatura e ferromagneto.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ANDERSON, P. W., SUHL, H. **Phys. Rev.** Vol. 116, p. 898, 1959.

BENZI, P.; BOTTIZZO, E.; RIZZI, N.; Oxygen determination from cell dimensions in YBCO superconductors. **Journal of Crystal Growth.** vol. 269, p. 625, 2004.

BENNEMANN, K.H.; KETTERSON, J.B.; **Physics of Superconductors. Vol. I Conventional and High-Tc Superconductors.** Berlin: Springer-Verlag, 2003.

BLACKSTEAD, H.A.; DOW, J.D.; PrBa₂Cu₃O₇: A new superconductor. **Journal of Superconductivity.** Vol. 8, p. 653, 1995.

BLAGOEV, B.S.; NURGALIEV, T.K.; STRBIK, V.; MATEEV, E.S.; ZALESKI, A.J.; Magnetic and transport parameters of LSMO and YBCO/LCMO films deposited on sapphire substrates. **Condensed Matter > Strongly Correlated Electrons.** arXiv: 1307.0302, 2013.

BRÜCK, S.; TREIBER, S.; MACKE, S.; AUDEHM, P.; CHRISTIANI, G.; SOLTAN, S.; HABERMEIER, H.-U.; GOERING, E.; ALBRECHT, J. The temperature-dependent magnetization profile across an epitaxial bilayer of ferromagnetic La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃ and superconducting YBa₂Cu₃O_{7-δ}. **New Journal of Physics.** Vol. 13, p. 033023, 2011.

BUZDIN, A.I., VUIICHICH, B., KUPRIYANOV, M.Y. **Journal of Experimental and Theoretical Physics.** Vol. 74, p. 124, 1992.

CHAHARA, K.; OHNO, T.; KASAI, M.; KANKE, Y.; KOZONO, Y.; Magnetoresistance effect of La_{0.72}Ca_{0.25}MnO₃/YBa₂Cu₃O₇/La_{0.72}Ca_{0.25}MnO₃ trilayered films. **Appl. Phys. Lett.** vol. 62, p. 780, 1993.

CHEN, C.Z.; BAI, C.B.; PENG, L.; LIU, Z.Y.; LU, Y.M.; WANG, H.W.; XIE, X.M.; Paramagnetic effect tuned by magnetic pinning in YBCO/LCMO heterostructures. **EPL Journal.** vol. 89, p. 37005, 2010.

CHEN, F.; GORSHUNOV, B.; CRISTIANI, G.; HABERMEIER, H.-U.; DRESSEL, M. Suppression of superconductivity in YBCO/LCMO superlattices. **Solid State Communications.** Vol. 131, p. 295, 2004.

CHEN, Z.; KAMETANI, F.; KIM, S.I.; LARBALESTIER, D.C.; JANG, H.W.; CHOI, K.J.; EOM, C. B. Influence of growth temperature on the vortex pinning properties of pulsed laser deposited YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films. **Journal of Applied Physics.** Vol. 103, p. 043913, 2008.

CHEONG, S.-W.; HWANG, H.Y. **Ferromagnetism vs charge/orbital ordering in mixed-valent manganites**, em TOKURA, Y. **Colossal Magnetoresistance Oxides.** Londres: Gordon and Breach Science Publishers, 2000.

CHIEN, T.Y.; KOURKOUTIS, L.F.; CHAKHALIAN, J.; GRAY, B.; KAREEV, M.; GUISENGER, N.P.; MULLER, D.A.; FREELAND, J.W.; Visualizing short-range charge transfer at the interfaces between ferromagnetic and superconducting oxides. **Nature Communications**. vol. 4, p. 2336, 2013.

CORREIA, T.M.P. **Lattice dynamics and relaxation mechanisms in doped SrTiO₃ ceramics**. Dissertação de mestrado, Universidade de Aveiro, Aveiro, Portugal, 2008.

DEEN, P.P.; YOKAICHIYA, F.; DE SANTIS, A.; BOBBA, F.; WILDES, A.R.; CUCOLO, A.M. Ferromagnetic clusters and superconducting order in La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃/YBa₂Cu₃O_{7-δ} heterostructure. **Physical Review B**. Vol. 74, p. 224414, 2006.

DEVELOSBAGARINAO, K.; YAMASAKI, H.; NAKAGAWA, Y.; ENDO, K. Pore formation in YBCO films deposited by a large-area pulsed laser deposition system. **Superconductor Science and Technology**. Vol.17, p. 1253, 2004.

DEVELOSBAGARINAO, K.; YAMASAKI, H.; NIE, J.C.; NAKAGAWA, Y. Thickness dependence of J_c for YBCO thin films prepared by large-area pulsed laser deposition on CeO₂-buffered sapphire substrates. **Superconductor Science and Technology**. Vol.18, p. 667, 2005.

DEVELOSBAGARINAO, K.; YAMASAKI, H. YBa₂Cu₃O_{7-δ} thin films with enhanced film properties grown on sapphire using Y₂O₃/CeO₂ bi-layer buffer. **Thin Solid Films**. Vol. 517, p. 6539, 2009.

DOBROSAVLJEVIC, V.; Introduction to Metal-Insulator Transitions; **Condensed Matter > Strongly Correlated Electrons**. arXiv: 1112.6166v1, 2011.

DÖRR, K.; DE TERESA, J.M.; MÜLLER, J.-H.; ECKERT, D.; WALTER, T.; VLAKHOV, E.; NENKOV, K.; SCHULTZ, L. Preparation and properties of epitaxial La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_{3-δ} films with reduced carrier density. **Journal of Physics: Condensed Matter**. Vol. 12, p. 7099, 2000.

DRIZA, N.; BLANCO-CANOSA, S.; BAKR, M.; SOLTAN, S.; KHALID, M.; MUSTAFA, L.; KAWASHIMA, K.; CHRISTIANI, G.; HAMERMEIER, H.-U.; KHALIULLIN, G.; ULRICH, C.; LE TACON, M.; KEIMER, B.; Long-range transfer of electron-phonon coupling in oxide superlattices. **Nature Materials**. vol. 11, p. 675, 2012.

EL TEHAN, A.M.M.; **Transport properties of YBa₂Cu₃O₇/PrBa₂Cu₃O₇ superlattices**. Tese de doutorado, Universidade de Johannes Gutenberg, Mainz, Alemanha, 2010.

EOM, C.B.; MARSHALL, A.F.; TRISCONE, J.-M.; WILKENS, B.; LADERMAN, S.S.; GEBALLE, T.H. A-axis oriented YBa₂Cu₃O₇/PrBa₂Cu₃O₇ superlattices. **SCIENCE**. Vol. 251, p. 780, 1991.

ESCHRING, M. Spin-polarized supercurrents for spintronics. **Physics Today**. Vol. 64, p. 43, 2011.

FEDOSEEV, S.A.; PAN, A.V; SHCHERBAKOVA, O.V.; DOU, S.X.; Electroresistance and magnetoresistance effects in superconductor-insulator-ferromagnet hybrid structures. **Physica C**. vol. 479, p. 143-146, 2012.

FEDOSEEV, S.A.; PAN, A.V; RUBANOV, S.; GOLOVCHANSKIY, I.A.; SHCHERBAKOVA, O.V.; Large, controllable spikes of magnetoresistance in $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ superlattices. **ACS Nano**. vol. 7, p. 286-293, 2013

FEWSTER, P.F.; X-ray diffraction from low-dimensional structures. **Semicond. Sci. Technol.** vol. 8, p. 1915, 1993.

FEWSTER, P.F.; Superlattices. **NATO ASI Series – X-ray and Neutron Dynamical Diffraction**. vol. 357, p. 289, 1996.

FLOKSTRA, M.G. CUNNINGHAM, T.C.; KIM, J.; SATCHELL, N.; MARROWS, C.H.; BURNELL, G.; BENDING, S.J.; CURRAN, P.J.; LANGRIDGE, S.J.; KINANE, C.; COOPER, J.F.K.; PUGASH, N.; ESCHRIG, M.; LEE, S.L. Controlled suppression of superconductivity by the generation of polarized Cooper pairs in spin valve structures. **Condensed Matter > Strongly Correlated Electrons** arXiv: 1404.2950v1, 2014.

GEIM, A.K.; DUBONOS, S.V.; LOK, J.G.S.; HENINI, M.; Paramagnetic Meissner effect in small superconductors. **NATURE**. vol. 369, p. 144, 1998.

GINZBURG, V.L.; **Superconductivity, superdiamagnetism, superfluidity**. California: MIR Publishers, 1964. apud SOLTAN, S.E.A-G.; **Interaction of Superconductivity and Ferromagnetism in YBCO/LCMO Heterostructures**. Tese de doutorado, Instituto Max Plank, Stuttgart, Alemanha, p. 124, 2005.

GIM, Y. KLEINSASSER, A.W.; BARNER, J.B. Current injection into high temperature superconductors: Does spin matter? **Journal of Applied Physics**. Vol. 90, p.4063, 2001.

GRAY, K.E. **Nonequilibrium Superconductivity, Phonons and Kapitza Boundaries**. New York: Plenum, 1981.

GUIMARÃES, A.P. **Magnetismo e Ressonância Magnética em Sólidos**. São Paulo: Editora da USP. 2009.

HOFFMANN, A.; VELTHUIS, S.G.E.; SEFRIQUI, Z.; SANTAMARIA, J.; FITZSIMMONS, M.R.; PART, S.; VARELA, M. Suppressed magnetization in $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ superlattices. **Physical Review B**. Vol. 72, p. 140407, 2005.

HEINZE, S.; HABERMEIER, H.-U.; CRISTIANI, G.; BLANCO CANOSA, S. LE TACON, M.; KEIMER, B.; Thermoelectric properties of YBCO-LCMO superlattices. **Applied Physics Letters**. vol. 101, p. 131603, 2012.

HOLDEN, T.; HABERMEIER, H.-U.; CRISTIANI, G.; GOLNIK, A.; BORIS, A.; PIMENOV, A.; HUMLICEK, J.; LEBEDEV, O.; VAN TENDELOO, G.; KEIMER, B.; BERNHARD, C. Proximity induced metal-insulator transition in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ superlattices. **Physica Review B**. Vol. 69, p. 064505, 2004.

HOPPLER, J.; **Magnetic induction in high-superconductor/ferromagnetic heterostructures**. Tese de doutorado, Universidade de Freiburg, 2009.

HOPPLER, J.; STAHN, J.; BOUYANFIF, H.; MALIK, V.K.; PATTERSON, B.D.; WILLMOTT, P.R.; CRISTIANI, G.; HABERMEIER, H.-U.; BERNHARD, C. X-ray study of structural domains in the near-surface region of SrTiO_3 substrates with $\text{Y}_{0.6}\text{Pr}_{0.4}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ superlattices grown on top. **Physical Review B**. Vol. 78, p. 134111, 2008.

HOPPLER, J.; STAHN, J.; NIEDERMAYER, C.; MALIK, V.K.; BOUYANFIF, H.; DREW, A.J.; RÖSSLE, M.; BUZDIN, A.; CRISTIANI, G.; HABERMEIER, H.-U.; KEIMER, B.; BERNHARD, C.; Giant superconductivity-induced modulation of the ferromagnetic magnetization in a cuprate-manganite superlattice. **Nature Materials**. vol. 8, p. 315, 2009.

Institut für Elektrische Messtechnik und Grundlagen der Elektrotechnik, **Lanthan Kalzium Manganat**. Disponível em: <http://www.emg.tu-bs.de/forschung/material/lanthan_d.html>. Acesso em: 19 abr. 2014.

IZYUMOV, Y.A.; PROSHIN, Y.N.; KHUSAINOV, M.G.; Competition between superconductivity and magnetism in ferromagnet/superconductor heterostructures. **Physics Uspekhi**. Vol. 45, p. 109, 2002.

JAEGER, R.C. **Introduction to Microelectronic Fabrication**. New Jersey: Prentice Hall Inc., 2002. <http://pt.scribd.com/doc/168374759/Introduction-to-Microelectronic-fabrication-R-C-jaeger>

JAKOB, G.; SCHMITT, M.; HAHN, T.; STÖLZEL, C.; KLUGE, T.; ADRIAN, H.; Superconductivity of YBCO/PBCO superlattices. **IEEE Transactions on Applied Superconductivity**. Vol. 3, p. 1624, 1993.

JHA, A.K.; KHARE, N.; Strongly enhanced pinning force density in YBCO–BaTiO₃ nanocomposite superconductor. **Physica C**. vol. 469, p. 810, 2009.

KHALID, A. **Nano dimensional Colossal Magnetoresistive (CMR) in manganites**. Disponível em: <<http://physlab.lums.edu.pk/images/a/ae/AsmaKhalid-CMR.pdf>>. Acesso em: 25 mar. 2013.

KETTERSON, J. B.; SONG, S. N. **Superconductivity**. Cambridge: Cambridge University Press, 1999.

KIM, J.; HAN, S.-K.; KANG, K.-Y.; Structural and superconducting properties of YBCO/PBCO superlattices. **Journal of the Korean Physical Society**. Vol. 31, p. 397, 1997.

KIM, J.; PARK, S.; PAK, J.; PARK, J. Minimizing Surface Roughness and Characterizations of Superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) for Use as a Bottom Metallic-Oxide Electrode in $\text{Au}/(\text{Bi},\text{La})_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}/\text{YBCO}$ Thin Film Capacitors. **Journal of the Korean Physical Society**, Vol. 46, p. 186, 2005.

KOLLER, D.; OSOFSKY, M.S.; CHRISEY, D.B.; HORWITZ, J.S.; SOULEN, R.J.; STROUD, R.M.; EDDY, C.R.; KIM, J.; AUYEUNG, R.C.Y.; BYERS, J.M.; WOODFIELD, B.F.; DALY, G.M.; CLINTON, T.W.; JOHNSON, M. Suppression of superconductivity by injection of spin-polarized current. **Journal of Applied Physics**. Vol. 83, p. 6774, 1998.

LABBÉ, J.; BOK, J. Superconductivity in Alkaline-Earth-Substituted La_2CuO_4 : a Theoretical Model. **Europhys. Lett.** Vol. 3, p. 1225, 1987.

LIÁNG, L.-C. **YBCO Superconductor Research Progress**. New York: Nova Science Publishers, 2008.

LIKHAREV, K.K. Superconducting weak links. **Reviews of Modern Physics**. vol. 51, p. 101, 1979.

LISBOA-FILHO P.N.; LEITE, E.R.; ARAUJO MOREIRA, F.M.; ZANETTI, S.M.; ORTIZ, W.A. The Search for Superconductivity in $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. **Physica C**. Vol. 341, p. 413, 2000.

LIU, H.; LIU, L.; SONG, X.; HONG, D.; WANG, Y.; LI, Y. Growth orientation and surface morphology of CeO_2 films for high- J_c YBCO films on biaxially-textured Ni tape by PLD. **Proc. of SPIE**. Vol. 7995 799521-1, 2011; doi:[10.1117/12.888280](https://doi.org/10.1117/12.888280)

LIU, I.-T.; HON, M.-H.; TEOH, L.G. Structure and optical properties of CeO_2 nanoparticles synthesized by precipitation. **Journal of Electronic Materials**. Vol. 42, p. 2536, 2013.

LIU, J.; KIRBY, B.J.; KAREEV, M.; FREELAND, J.W.; HABERMEIER, H.-U.; CRISTIANI, G.; KEIMER, B.; CHAKHALIAN, J.; Electronic and magnetic properties of the interface between a doped cuprate $\text{Y}_{0.6}\text{Pr}_{0.4}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ and a colossal-magnetoresistance manganite $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$. **Condensed Matter > Strongly Correlated Electrons**. arXiv: 0907.2656, 2009.

LOETZSCH, R.; LÜBCKE, A.; USCHMANN, I.; FÖRSTER, E.; GROBE, V.; THUERK, M.; KOETTIG, T.; SCHMIDL, F.; SEIDEL, P. The cubic to tetragonal phase transition in SrTiO_3 single crystals near its surface under internal and external strains. **Applied Physics Letters**. Vol. 96, p. 071901, 2010.

LÓPEZ DE LA TORRE, M.A.; PEÑA, V.; SEFRIQUI, Z.; ARIAS, D.; LEON, C.; SANTAMARIA, J.; MARTINEZ, J.L.; Paramagnetic Meissner effect in YBCO/LCMO superlattices. **PHYSICAL REVIEW B**. vol. 73, p. 052503, 2006.

LUZHBIN, D.A.; PAN, A.V.; KOMASHKO, V.A.; FLIS, V.S.; PAN, V.M.; DOU, S.X.; ESQUINAZI, P.; Origin of paramagnetic magnetization in field-cooled YBCO films. **PHYSICAL REVIEW B**. vol. 69, p. 024506, 2004.

MALIK, V.K.; MAROZAU, I.; DAS, S.; DOGGETT, B.; SATAPATHY, D.K.; URIBEL-AVERDE, M.A.; BISKUP, N.; VARELA, M.; SCHNEIDER, C.W.; MARCELOT, C.; STAHN, J.; BERNHARD, C.; Pulsed laser deposition growth of heterospitaxial $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ superlattices on NdGaO_3 and $\text{Sr}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{Al}_{0.65}\text{Ta}_{0.35}\text{O}_3$ substrates. **Physical Review B**. vol. 85, p. 054514, 2012.

MARTINIS, J.M.; HILTON, G.C.; IRWIN, K.D. WOLLMAN, D.A. Calculation of T_c in a normal-superconductor bilayer using the microscopic-based Usadel theory. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**. Vol. 444, p. 23, 2000.

MASILAMANI, N.; SHCHERBAKOVA, O.V.; FEDOSEEV, S.A.; PAN, A.V.; DOU, S.X. Effect of substrate and buffer layer materials on properties of thin $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ films. **IEEE Transactions on Applied Superconductivity**. Vol 23, p. 6601105, 2013.

MAZIN, I.I. Theoretical possibilities for superconductivity in $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. **Physical Review B**. Vol. 60, p. 92, 1999.

MCELFRESH, M.; **Fundamentals of Magnetism and Magnetic Measurements**. Purdue University, 1994.

MCELFRESH, M.; LI, SHI.; SAGER, R.; Effects of magnetic field uniformity on the measurement of superconducting samples. **Quantum Design, Inc.** 2011. <<http://www.qdusa.com/sitedocs/appNotes/mpms/1014-825.pdf>>

MIURA, O.; ONO, Y.; ITO, D.; MATSUMOTO, K.; Critical current density characteristics in YBCO films on MgO substrates by pulsed laser deposition. **IEEE Trans. Appl. Supercond.** vol. 15, p. 3042, 2005

MORÁN, O.; PEREZ, F.; SALDARRIAGA, W.; GROSS, K.; BACA, E. Magnetic anisotropic behavior in epitaxial $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MO}_3$ and $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MO}_3/\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ trilayered structures. **Journal of Applied Physics**. Vol. 103, p. 07F724, 2008.

NAGAEV, É.L. Phase separation in degenerate magnetic oxide semiconductors. **Physics of the Solid State**. Vol. 40, p. 1873, 1998.

NICKEL, J.; Magnetoresistance Overview. **HP Laboratories Technical Report**. HPL-95-60, 1995.

NICOL, E.J.; CARBOTTE, J.P. Comparison of s- and d-wave gap symmetry in nonequilibrium superconductivity. **Physical Review B**. Vol 67, p. 214506, 2003.

NIE, J.C.; YAMASAKI, H.; MAWATARI, Y. Self-assembled growth of CeO_2 nanostructures on sapphire. **Physical Review B**. Vol. 70, p. 195421, 2004.

NIGAM, R.; PAN, A.V.; DOU, S.X. Explanation of magnetic behaviour in Ru-based superconducting ferromagnets. **Physical Review B**. Vol. 77, p. 134509, 2008.

ODA, M.; HIDAKA, Y.; SUZUKI, M.; MURAKAMI, T. Anisotropic superconducting properties of $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_{7-\delta}$. **Physical Review B**. Vol. 38, p. 252, 1988.

OKTEM, B.; BOZBEY, A.; AVCI, I.; TEPE, M.; ABUKAY, D.; FARDMANESH, M.; The superconducting transition width and illumination wavelength dependence of the response of MgO substrate YBCO transition edge bolometers. **Physica C**. vol. 458, p. 6, 2007.

OPEL, M. Spintronic oxides grown by laser-MBE. **Journal of Physics D: Applied Physics**. Vol. 45, p. 033001, 2012.

PAN, A.V.; FEDOSEEV, S.A.; SHCHERBAKOVA, O.V.; GOLOVCHANSKIY, I.A.; ZHOU, S.; DOU, S.X.; WEBBER, R.J.; MUKHANOV, O.A.; YAMASHITA, T.; TAYLOR, R.; Development of energy-efficient cryogenic leads with high temperature superconducting films on ceramic substrate. **Physics Procedia**. vol. 36, p. 365-370, 2012.

PAN, A.V.; PYSARENKO, S.; DOU, S.X.; Drastic improvement of structure and current-carrying ability in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ films by introducing multilayered structure. **Applied Physics Letters**. vol. 88, p. 232506, 2006.

PAN, A.V.; PYSARENKO, S.; WEXLER, D.; RUBANOV, S.; DOU, S.X. Multilayering and Ag-doping for properties and performance enhancement in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ films. **IEEE Transactions of Applied Superconductivity**. Vol. 17, p. 3585, 2007.

PAN, V.M.; TRETITCHENKO, C.G.; FLIS, V.S.; KOMASHKO, V.A.; KALENYUK, O.A.; PASHITSKII, E.A.; IVANYUTA, A.N.; MELKOV, G.A.; ZANDBERGEN, H.W.; SVETCHNIKOV, V. L. Linear-Defect-Induced Thermal Instability in YBCO Thin Films in Microwave Fields. **Journal of Superconductivity: Incorporating Novel Magnetism**, Vol. 16, p.889, 2003.

PANG, B.S. **Control of superconductivity in cuprate/manganite heterostructures**. Tese de doutorado, Universidade de Cambridge, 2004.

PARK, B.-E.; SAKAI, I.; TOKUMITSU, E.; ISHIWARA, H.; Hysteresis characteristics of vacuum-evaporated ferroelectric $\text{PbZr}_{0.4}\text{Ti}_{0.6}\text{O}_3$ films on Si(111) substrates using CeO_2 buffer. **Applied Surface Science**. Vol. 117-118, p. 423, 1997.

PARKER, W.H. Modified heating theory of nonequilibrium superconductors **Physica Review B**. Vol. 12, p. 3667, 1975.

PEÑA, M.A.; FIERRO, J.L.G. Chemical structure and performance of perovskita oxides. **Chemical Review**. Vol. 101, p. 1981, 2001.

PEÑA, V.; NEMES, N.; GARCIA-BARRIOCANAL, J.; SEFRIQUI, Z.; LEON, C.; TE VELTHUIS, S.G.E.; HOFFMANN, A.; GARCIA-HERNANDEZ, M.; MARTINEZ, J.L.; SANTAMARIA, J.; Large magnetoresistance at oxide $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ and $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ interfaces. **Advances in Science and Technology**. vol. 45, p. 2545, 2006.

PEÑA, V.; SEFRIQUI, Z.; ARIAS, D.; LEON, C.; SANTAMARIA, J.; VARELA, M.; PENNYCOOK, S.J.; MARTINEZ, J.L.; Coupling of superconductors through a half-metallic ferromagnet: Evidence for a long-range proximity effect. **PHYSICAL REVIEW B**. vol. 69, p. 224502, 2004.

PETRISOR, T.; BOFFA, V.; FABBRI, F.; NERI, D.; MONTONE, A.; KRASNOWSKI, M. Structural and morphological properties of in-situ PLD YBCO/STO/YBCO trilayer. **Superlattices and Microstructures**. Vol. 21, p.487, 1997.

POOLE, C. P.; FARACH, H. A.; CRESWICK, R. J. **Superconductivity**. London: Academic Press, 1995.

PUREUR, P. **Estado Sólido**. Porto Alegre: Instituto de Física, 2001.

PRIJAMBOEDI, B.; TAKASHIMA, H.; SHOJI, A. AFM study of SrTiO₃ and YBa₂Cu₃O_{7-δ} multilayer surface treated with chemical mechanical polishing process. **Journal of Physics: Conference Series**. Vol. 43, p. 325, 2006.

PUCH, F.; BAQUERO, R.; PrBa₂CuO₇: band structure, optical conductivity and apical oxygen displacement. **Superficies y vacío**. Vol. 13, p. 30, 2001.

PYSARENKO, S. V.; PAN, A.V.; DOU, S.X. Origin of surface morphology variation during pulsed laser deposition of YBa₂Cu₃O₇ superconducting films. **IEEE Transactions of Applied Superconductivity**. Vol. 21, p. 3179, 2011.

QUIJADA, M.; CERNE, J.; SIMPSON, J.R.; DREW, H.D.; AHN, K.H.; MILLIS, A.J.; SHREEKALA, R.; RAMESH, R.; RAJESWARI, M.; VENKATESAN, T.; Optical conductivity of manganites: Crossover from Jahn-Teller small polaron to coherent transport in the ferromagnetic state. **Physical Review B**. vol. 58, p. 24, 1998.

RADOVIC, Z.; LEDVIJ, M.; DOBROSAVLJEVIC-GRUJIC, L.; BUZDIN, A.I.; CLEM, J.R. **Physical Review B**. Vol. 44, p. 759, 1991.

SAWADA, Y.; TERAJ, H.; FUJIMAKI, A.; TAKAI, Y.; HAYAKAWA, H. Transport properties of YBCO/PBCO/YBCO junctions. **IEEE Transactions on Applied Superconductivity**. Vol. 5, p. 2099, 1995.

SCHIFFER, P.; RAMIREZ, A.P.; BAO, W.; CHEONG, S.-W. Low temperature magnetoresistance and the magnetic phase diagram of La_{1-x}Ca_xMnO₃. **Physical Review Letters**. Vol. 75, p. 3336, 1995.

SEFRIQUI, Z.; ARIAS, D.; PEÑA, V.; VILLEGAS, J.E.; VARELA, M.; PRIETO, P.; LEÓN, C.; MARTINEZ, J.L.; SANTAMARIA, J.; Ferromagnetic/superconducting proximity effect in La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃/YBa₂Cu₃O_{7-δ} superlattices. **Physical Review B**. Vol. 67, p. 214511, 2003.

SEM, C.; ALVAREZ, G.; DAGOTTO, E. First order colossal magnetoresistance transitions in the two-orbital model for manganites. **Physical Review Letters**. Vol. 2010, p. 097203, 2010.

SHARMA, M.; SHARMA, K.K.; KUMAR, R.; CHOUDHARY, R.J. Electrical and magneto-transport properties of ferromagnetic/superconductor/ferromagnet based heterostructure. **Physica C**. Vol. 497, p. 30, 2014.

SHUKLA, A.; BARBIELLINI, B.; ERB, A.; MANUEL, A.; BUSLAPS, T.; HONKIMÄKI, V.; SUORTTI, P. Hole depletion and localization due to disorder in insulating $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$: A Compton scattering study. **Physical Review B**. Vol. 59, p. 12127, 1999.

SOLTAN, S.E.A-G.; **Interaction of Superconductivity and Ferromagnetism in YBCO/LCMO Heterostructures**. Tese de doutorado, Instituto Max Plank, Stuttgart, Alemanha, p. 124, 2005.

SOLTAN, S.; ALBRECHT, J.; HABERMEIER, H.-U.; Ferromagnetic/superconducting bilayer structure: A model system for spin diffusion length estimation. **Physical Review B**. Vol. 70, p. 144517, 2004.

SOU, U-C.; YANG, H.C; WANG, L.M.; LEE, C-Y.; HORNG, H.E.; Flux pinning in superconducting YBCO thin films with an artificial magnetic pinning lattice. **Chinese Journal of Physics**. vol.43, p. 3-II, 2005.

TAKAHASHI, S.; IMAMURA, H.; MAEKAWA, S. Spin imbalance and magnetoresistance in ferromagnet/superconductor/ferromagnet Double tunnel junctions. **Physical Review B**. Vol. 82, p. 3911, 1999.

TIETZ, L.A.; CARTER, C.B.; LATHROP, D.K.; RUSSEK, S.E.; BUHRMAN, R.A.; MICHAEL, J.R. Crystallography of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ thin film – substrate interfaces. **Journal of Materials Research**. Vol. 4, p. 1072, 1989.

TONIOLO, F.S.; **Óxidos mistos do tipo perovskita para a geração de gás de síntese**. Tese de doutorado, Universidade Federal do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, p. 6, 2010.

TRISCONI, J.-M.; FISCHER, O.; BRUNNER, O.; ANTOGNAZZA, L.; KENT, A.D. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Superlattices: Properties of ultrathin superconducting layers separated by insulating layers. **Physical Review Letters**. Vol 64, p. 804, 1990.

VAN DER PAUW, L.J.; A method of measuring specific resistivity and hall effect of discs of arbitrary shape. **Philips Research Reports**. vol.13, p. 1, 1958.

VARELA, M.; GROGGER, W.; ARIAS, D.; SEFRIQUI, Z.; LEÓN, C.; VAZQUEZ, L.; BALLESTEROS, C.; KRISHNAN, K.M.; SANTAMARIA, J.; Effects of epitaxial strain on the growth mechanism in YBCO thin films in YBCO/PBCO superlattices. **Physical Review B**. Vol. 66, p. 174514, 2002.

VARELA, M.; SEFRIQUI, Z.; ARIAS, D.; NAVACERRADA, M.A.; LUCÍA, M.; LOPEZ DE LA TORRE, M.A.; LEÓN, C.; LOOS, G.D.; SÁNCHEZ-QUESADA, F.; SANTAMARIA, J.; Intracell changes in epitaxially strain YBCO ultrathin layers in YBCO/PBCO superlattices. **Physical Review Letters**. Vol. 83, p. 3936, 1999.

VISANI, C.; CRASSOUS, A.; VILLEGAS, J.E. All-oxide superconductor/ferroic hybrids. **The European Physical Journal Special Topics**. Vol. 222, p. 1241, 2013.

WERNER, R.; RAISCH, C.; RUOSI, A.; DAVIDSON, B.A.; NAGEL, P.; MERZ, M.; SCHUPPLER, S.; GLASER, M.; FUJII, J.; CHASSÉ, T.; KLEINER, R.; KOELLE, D.; YBCO/LCMO bilayers: Interface coupling and electric transport properties. **PHYSICAL REVIEW B**. vol. 82, p. 224509, 2010.

WU, M.K.; ASHBURN, J.R.; TORNG, C.J.; HOR, P.H.; MENG, R.L.; GAO, L.; HUANG, Z.J.; WANG, Y.Q.; CHU, C.W.; Superconductivity at 93K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure. **PHYSICAL REVIEW LETTERS**. vol. 58, p. 9, 1987.

WU, X.D.; DYE, R.C.; MUENCHHAUSEN, R.E.; FOLTYN, S.R.; MALEY, M.; ROLLETT, A.D.; GARCIA, A.R.; NOGAR, N.S. Epitaxial CeO₂ films as buffer layers for high-temperature superconducting thin films. **Applied Physics Letters**. Vol. 58, p. 2165, 1991.

YANG, J.; ZHANG, H.; FENG, X.L.; LIU, H.Z.; ZHOU, Q. Study on deposition of YBCO for coated conductor using pulsed laser deposition. **Journal of Physics: Conference Series**. Vol. 234, p. 022043, 2010.

YEH, N.-C.; VASQUEZ, R.P.; BEAM, D.A.; FU, C.-C.; HUYNH, J.; BEACH, G.; Effects of lattice distortion and Jahn-Teller coupling on magnetoresistance of La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃ and La_{0.5}Ca_{0.5}CoO₃ epitaxial films. **Journal of Physics: Condensed Matter**. Vol. 9, p. 3713, 1997.

YEH, N.-C.; VASQUEZ, R.P.; FU, C.-C.; SAMOILOV, A.V.; LI, Y.; VAKILI, K. Nonequilibrium superconductivity under spin-polarized quasiparticle currents in perovskite ferromagnet-insulator-superconductor heterostructures. **Physical Review B**. Vol. 60, p. 10522, 1999.

YOUNSI, W.; LAHOUBI, M.; SOLTANI, M.-L.; New magnetic phase transitions in the tetragonal compounds PrBa₂Cu₃O_{6+x} at low temperature. **J. Low Temp. Phys.** vol. 166, p. 218, 2012.

ZHANG, J.; ZHAO, H.; WEI, F.; YANG, M.; YANG, Z.; CHEN, Q.; CHEN, J. Resistive switching behaviour of highly epitaxial CeO₂ thin film for memory application. **Physica Status Solidi – Rapid Research Letters**. Vol. 8, p. 95, 2014.

ZHANG, M.J.; YIN, Y.W.; SU, T.S.; TENG, M.L.; ZHANG, D.L.; LI, X.G.; ZOU, L.J. Effect of injected spins with different polarized orientations on the superconductivity of La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃/La_{1.85}Sr_{0.15}CuO₄ thin films. **Applied Physics Letters**. Vol. 103, p. 193506, 2013.

ZHANG, X.; WANG, S.J.; ONG, C.K. Angular field-dependent dimensional transition in YBa₂Cu₃O_{7- δ} /PrBa₂Cu₃O_{7- δ} superlattice. **Physica C**. Vol. 329, p. 279, 2000.

ZHANG, Z.L.; KAISER, U.; SOLTAN, S.; HABERMEIER, H.-U. KEIMER, B.; Magnetic properties and atomic structure of $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3\text{-YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ heterointerfaces. **Applied Physics Letters**. vol. 95, p. 242505, 2009.

ZHAO, H.; SHEN, J.-L.; ZHAO, Z.X. Proximity effect in layered high T_c superconductors. **Physica C**. Vol. 333, p. 242, 2000.

ZHENG, Z.; XING, D.Y.; SUN, G.; DONG, J. Andreev reflection effect on spin-polarized transport in ferromagnet/superconductor/ferromagnet double tunnel junctions. **Physical Review B**. Vol. 62, p. 14326, 2000.

PUBLICAÇÕES:

- YONAMINE, A.H.; DOS SANTOS, D.I.; PAN, A.V.; FEDOSEEV, S.A.; OAKDEN, D.; PARSONS, B.; SHCHERBAKOVA, O.V.; GOLOVCHANSKIY, I.A.; MASILAMANI, N.; WEBBER, R.J.; MUKHANOV, O.A. Properties of individual YBCO layers in a two-layered design for energy-efficient digital data cables. **IEEE 14th International Superconductive Electronics Conference (ISEC)**, 2013.

- YONAMINE, A.H.; FEDOSEEV, S. A. ; DOS SANTOS, D.I. ; PAN, A.V. Magnetic properties of YBCO/LCMO superlattices with and without STO interlayers. **Advanced Materials Research** (Online), 2014.

- NOGUEIRA, N.A.; YONAMINE, A.H.; DOS SANTOS, D.I.; KIM, J. H.; DOU, S. X. Characterization of superconducting BSCCO/CaSiO₃ and BSCCO/CaZrO₃ Ag PIT wires. **Advanced Materials Research** (Online), 2014.