

RAFAEL SILVA GONÇALVES

**ESTUDO DA INTERAÇÃO MAGNÉTICA EM VÁLVULAS  
DE SPIN E GELOS DE SPIN ARTIFICIAIS  
UNIDIRECIONAIS PARA APLICAÇÃO EM EFEITO DE  
PROXIMIDADE SUPERCONDUTORA**

Tese apresentada à Universidade Federal de Viçosa, como parte das exigências do programa de Pós-Graduação em Física, para obtenção do título de *Doctor Scientiae*.

VIÇOSA  
MINAS GERAIS – BRASIL  
2019

**Ficha catalográfica preparada pela Biblioteca Central da Universidade  
Federal de Viçosa - Câmpus Viçosa**

T

G635e  
2019  
Gonçalves, Rafael Silva, 1988-  
Estudo da interação magnética em válvulas de spin e gelos de spin artificiais unidirecionais para aplicação em efeito de proximidade supercondutora / Rafael Silva Gonçalves. – Viçosa, MG, 2019.

vi, 115 f. : il. (algumas color.) ; 29 cm.

Inclui apêndices.

Orientador: Clodoaldo Irineu Levartoski de Araujo.

Tese (doutorado) - Universidade Federal de Viçosa.

Referências bibliográficas: f. 106-112.

1. Supercondutividade. 2. Gelo de spin . 3. Spintrônica.  
I. Universidade Federal de Viçosa. Departamento de Física.  
Programa de Pós-Graduação em Física. II. Título.

CDD 22. ed. 537.623

RAFAEL SILVA GONÇALVES

**ESTUDO DA INTERAÇÃO MAGNÉTICA EM VÁLVULAS DE SPIN E GELOS DE  
SPIN ARTIFICIAIS UNIDIRECIONAIS PARA APLICAÇÃO EM EFEITO DE  
PROXIMIDADE SUPERCONDUTORA**

Tese apresentada à Universidade Federal de Viçosa, como parte das exigências do Programa de Pós-Graduação em Física, para obtenção do título de *Doctor Scientiae*.

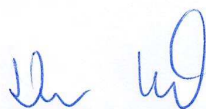
APROVADA: 19 de março de 2019.



Antônio Ribeiro de Moura



Eduardo Nery Duarte de Araújo



Daniel Leandro Rocco



Mauro Melchtiades Doria



Clodoaldo Irineu Levartoski de Araujo  
(Orientador)

# Agradecimentos

Agradeço primeiramente a Deus, pois sei que em toda essa trajetória esteve comigo e cuidando de mim.

Agradeço à minha linda, maravilhosa e amada esposa Lídia, por me apoiar a fazer dois anos de mestrado e mais 4 de doutorado sem ter até hoje minha carteira de trabalho assinada por outra pessoa além de mim. Obrigado por cuidar da minha saúde física e mental. Obrigado por existir na minha vida.

Agradeço à minha filha, minha princesinha Diana (talvez este nome tenha algo a ver com a mulher maravilha...talvez), por sorrir para mim todos os dias e me fazer entender que o importante da vida é ser feliz.

Agradeço aos meus pais Luiz e Das Dores por tudo que fizeram e continuam fazendo por mim. Mesmo as vezes longe, sempre pareciam estar ao meu lado para ajudar.

Agradeço ao meu orientador Clodoaldo por me ensinar tantas coisas e ser mais do que um orientador, um amigo. Obrigado por confiar diferentes trabalhos a mim, o que só me fez crescer e aprender mais. Me sinto honrado por ter me acolhido de braços abertos e por ter me deixado fazer parte da história do LabSpiN.

Agradeço ao Renan, meu velho amigo desde a graduação. Estamos sempre brigando pelo mesmo assunto inacabado (nem começa, foi você que bebeu aquele suco), discutindo e se amando, tudo ao mesmo tempo!

*I would like to thank Dr. Moodera for opening the doors of MIT for me. It was one of the most learning moments of my entire life. There are no words to describe how much I appreciate the opportunity you gave me to be part of your group. I learned so much observing you, listening to you. I grew up as scientist and as person.*

*I thank Juan not Martinez and Yoto 5000, the best scientists in the world (at least the ones I know). You were much more than a professional example, you were friends. I hope to see you both often so Diana, Javi and Kotoko can be friends as well.*

Agradeço ao Cacilhas por me abrigar em sua casa e por me ajudar nas discussões teóricas da tese.

Agradeço a todos amigos da salinha da Pós. Zé Roberto por não ter tido a escolha da minha amizade. Ao Leandro que sempre nos motivava e nunca reclamava de nada.

Agradeço à CAPES, CNPq e FAPEMIG pelo apoio financeiro.

# Sumário

|  |           |
|--|-----------|
| <b>Resumo</b>  | <b>iv</b> |
| <b>Abstract</b>  | <b>v</b>  |
| <b>1 Introdução e motivação</b>                              | <b>1</b>  |
| <b>2 Magnetismo</b>  | <b>4</b>  |
| 2.1 Momento magnético . . . . .                              | 4         |
| 2.2 Dipolo magnético . . . . .                               | 5         |
| 2.3 Magnetização e indução magnética . . . . .               | 6         |
| 2.4 Átomos em um campo magnético . . . . .                   | 7         |
| 2.5 Efeito Zeeman . . . . .                                  | 8         |
| 2.6 Paramagnetismo de Pauli . . . . .                        | 10        |
| 2.7 Interação dipolar . . . . .                              | 12        |
| 2.8 Interação de troca . . . . .                             | 12        |
| 2.9 Spintrônica . . . . .                                    | 15        |
| 2.9.1 Válvula de spin . . . . .                              | 15        |
| 2.9.2 Gelo de spin natural e artificial . . . . .            | 17        |
| 2.9.3 Gelo de spin unidirecional . . . . .                   | 19        |
| <b>3 Supercondutividade</b>                                  | <b>21</b> |
| 3.1 A descoberta . . . . .                                   | 21        |
| 3.2 Efeito Meissner-Ochsenfeld . . . . .                     | 22        |
| 3.3 Campo crítico . . . . .                                  | 23        |
| 3.4 Termodinâmica da fase supercondutora . . . . .           | 23        |
| 3.5 Teoria de London . . . . .                               | 29        |
| 3.5.1 Não localidade de Pippard . . . . .                    | 33        |
| 3.6 Teoria de Ginzburg-Landau . . . . .                      | 35        |
| 3.6.1 Energia livre na ausência de campo magnético . . . . . | 35        |
| 3.6.2 Comprimento de coerência de Ginzburg Landau . . . . .  | 39        |
| 3.6.3 Energia livre na presença de campo magnético . . . . . | 42        |
| 3.7 Campo crítico superior . . . . .                         | 43        |
| 3.8 Teoria BCS . . . . .                                     | 45        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 3.9      | Interação MN/SC e FM/SC . . . . .                    | 49         |
| 3.10     | Campo crítico superior no limite sujo . . . . .      | 52         |
| 3.11     | Spintrônica supercondutora . . . . .                 | 56         |
| <b>4</b> | <b>Métodos</b>                                       | <b>62</b>  |
| 4.1      | Construção de um susceptômetro AC . . . . .          | 62         |
| 4.1.1    | Introdução . . . . .                                 | 62         |
| 4.1.2    | Princípio de funcionamento . . . . .                 | 63         |
| 4.1.3    | Montagem do equipamento . . . . .                    | 66         |
| 4.2      | Sputtering . . . . .                                 | 68         |
| 4.3      | Microscopia de força magnética (MFM) . . . . .       | 69         |
| <b>5</b> | <b>Resultados de GSAs unidirecionais</b>             | <b>70</b>  |
| 5.1      | Fabricação . . . . .                                 | 70         |
| 5.2      | Análise quantitativa . . . . .                       | 72         |
| 5.3      | Resultados experimentais . . . . .                   | 74         |
| <b>6</b> | <b>Resultados da válvula de spin supercondutora</b>  | <b>82</b>  |
| 6.1      | O spin switch . . . . .                              | 82         |
| 6.2      | Análise quantitativa . . . . .                       | 92         |
| 6.2.1    | Campo crítico Superior . . . . .                     | 92         |
| 6.2.2    | Constante de difusão . . . . .                       | 97         |
| 6.2.3    | Livre caminho médio . . . . .                        | 98         |
| 6.2.4    | Gap supercondutor . . . . .                          | 99         |
| 6.2.5    | Constante de troca . . . . .                         | 99         |
| <b>7</b> | <b>Conclusão geral e perspectivas</b>                | <b>100</b> |
| 7.1      | Gelo de spin unidirecional . . . . .                 | 100        |
| 7.2      | Válvula de spin supercondutora . . . . .             | 102        |
|          | <b>Referências Bibliográficas</b>                    | <b>112</b> |
| <b>8</b> | <b>Apêndice A - Publicações</b>                      | <b>113</b> |
| <b>9</b> | <b>Apêndice B - Difração de raios-X de GdN e NbN</b> | <b>115</b> |

# Resumo

GONÇALVES, Rafael Silva, D.Sc., Universidade Federal de Viçosa, março de 2019. **Estudo da interação magnética em válvulas de spin e gelos de spin artificiais unidirecionais para aplicação em efeito de proximidade supercondutora.** Orientador: Clodoaldo Irineu Levartoski de Araújo. Coorientador: Alex Aparecido Ferreira.

Estruturas do tipo ferromagneto(FM1)/supercondutor(SC)/ferromagneto(FM2) tem sido foco de muitas pesquisas uma vez que a temperatura de transição do supercondutor pode ser controladas através da orientação paralela (P) e anti-paralela (AP) da magnetização entre as camadas FM1 e FM2, em uma pseudo válvula de spin supercondutora (SSVs). A correta manipulação destas válvulas de spin a temperaturas próximas da crítica possibilita um controle entre o estado normal e o estado supercondutor da camada supercondutora através de campos magnéticos de baixa intensidade, levando estes dispositivos a chamada magnetorresistência infinita. Na primeira parte deste trabalho investigamos estruturas de tri-camadas GdN/NbN/GdN crescidas por sputtering reativo com diferentes espessuras do espaçador NbN ( $d_{NbN}$ ). As amostras foram submetidas a medidas de susceptibilidade AC para identificar os campos coercivos das camadas FM1 e FM2, e para verificar a existência de acoplamento ferromagnético entre as camadas de GdN quando NbN se encontra no estado supercondutor. Também foram realizadas medidas de magnetorresistência das amostras em baixas temperaturas para o controle da resistência da junção e da temperatura de transição ( $T_c$ ) quando submetida a campos magnéticos. Na segunda parte deste trabalho, investigamos a mobilidade e emergência da população de cargas magnéticas em função da distância lateral  $d_x$  e longitudinal  $d_y$  entre os nanomagnetos de  $Ni_{0,8}Fe_{0,2}$  em cinco redes lineares de diferentes espaçamentos. A configuração ferromagnética ou antiferromagnética das nanoilhas, ao longo das diferentes redes, pode ser utilizada no controle de propriedades supercondutoras, de modo que a combinação entre nanomagnetos e supercondutividade pode dar origem a novos dispositivos de memória criogênica baseados em efeitos de proximidade. Os resultados observados também podem ser aplicados no design de dispositivos lógicos nanomagnéticos e possibilitam o entendimento sobre a mobilidade unidirecional das cargas magnéticas para aplicações em dispositivos spintrônicos e em magnetricidade.

# Abstract

GONÇALVES, Rafael Silva, D.Sc., Universidade Federal de Viçosa, March, 2019. **Study of the magnetic interaction in spin valves and unidirectional artificial spin ice for application in superconducting proximity effect.** Adviser: Clodoaldo Irineu Levartoski de Araújo. Co-adviser: Alex Aparecido Ferreira.

Structures like ferromagnetic (FM1)/superconductor (SC)/ ferromagnetic (FM2) has been intensively studied in recent years since the superconducting transition temperature can be controlled by the parallel (P) and anti-parallel (AP) magnetization of the FM1 and FM2 layers in a pseudo superconducting spin valve (SSVs). The correct manipulation of these spin valves at temperatures close to the critical makes possible a control between the normal state and the superconducting state of the superconducting layer through magnetic fields of low intensity, taking these devices the so-called infinite magnetoresistance. In the first part of this work we investigated GdN / NbN / GdN tri-layer structures grown by reactive sputtering with different thicknesses of the NbN ( $d_{NbN}$ ) spacer. The samples were submitted to AC susceptibility measurements to identify the coercive fields of the FM1 and FM2 layers, and to verify ferromagnetic coupling between the GdN layers when NbN is in the superconducting state. Also, magnetoresistance measurements of the samples at low temperatures were performed to control the junction resistance and transition temperature ( $T_c$ ). In the second part of this work, we investigated the mobility and emergence of the magnetic charge population as a function of the lateral  $d_x$  and longitudinal  $d_y$  distance between  $Ni_{0,8}Fe_{0,2}$  nanomagnets in five linear networks with different spacing. The ferromagnetic or antiferromagnetic configuration of nanoislands along the networks can be used to control superconducting properties, so that the combination of nanomagnets and superconductivity may give rise to new cryogenic memory devices based on proximity effects. The observed results can also be applied in designs of nanomagnetic logic devices and allow the understanding of the unidirectional mobility of magnetic charges for spintronic and magnetricity applications.

# 1 Introdução e motivação

Na eletrônica clássica, desde a descoberta do diodo, toda informação utilizada em dispositivos eletrônicos era baseada no transporte e interação entre elétrons e buracos. Porém, esta tecnologia apresenta limitações relacionadas às dimensões dos dispositivos, assim como eficiência e velocidade de processamento de dados.

A descoberta da magnetorresistência gigante (GMR), em 1988, mudou completamente este contexto e abriu um caminho para o controle eficiente de cargas e de spins em materiais ferromagnéticos [1, 2]. Estes novos dispositivos que utilizam multicamadas metálicas nanoestruturadas, denominados dispositivos spintrônicos, podem gerar correntes de spin para transferir informações, permitindo a redução do consumo de energia, além de serem mais velozes que os convencionais. O efeito consiste em uma variação da resistência  $\Delta R$  da estrutura quando submetida a campos magnéticos. A magnetorresistência relativa  $\Delta R/R$ , pode alcançar entre 5 e 15% em estruturas de válvula de spin FM/MN/FM em que FM representa um material ferromagnético e MN um metal normal não magnético. Nos anos 90, foi observado pelo Físico do MIT (*Massachusetts Institute of Technology*) Jagadeesh Moodera, que a introdução de um material isolante (I) entre camadas de materiais ferromagnéticos em uma estrutura FM/I/FM, dá origem à magnetorresistência túnel que atualmente pode alcançar até 20% à temperatura ambiente [3, 4]. Entretanto, uma das mais fascinantes descobertas no ramo da física da matéria condensada nas últimas décadas foi a magnetorresistência infinita, que ocorre quando um material supercondutor (SC) é intercalado entre dois materiais ferromagnéticos em uma estrutura de válvula de spin supercondutora FM/SC/FM. Neste tipo de estrutura, por se tratar de um supercondutor, a resistência da junção pode assumir um valor nulo quando submetida a pequenos campos magnéticos, levando a magnetorresistência relativa para infinito [5] em um efeito chamado *spin switch* (SSE). Porém, a combinação entre ferromagnetismo e supercondutividade não é nada trivial, pois interações ferromagnéticas requerem orientações de spins paralelas (P) enquanto a supercondutividade é guiada pelos pares de Cooper, que consiste em dois elétrons com spins opostos em uma configuração anti-paralela (AP). O SSE tem sua origem na manipulação da orientação dos spins nas camadas FM quando submetidos a campos magnéticos externos e no possível controle da quebra dos pares de Cooper mediante a campos de troca induzidos pelo ferromagnetismo.

A ideia de controlar a supercondutividade através do magnetismo foi primeiramente proposta por de Gennes [6] em 1966. Em seu trabalho teórico, uma camada fina de material supercondutor, cuja espessura  $d_S < \xi_S$ , em que  $\xi_S$  representa o tamanho do par de Cooper, é

intercalado entre dois materiais ferromagnéticos isolantes (FI) em uma estrutura de tricamada. Através da interação de troca sentida pelos pares de Cooper com as primeiras camadas atômicas dos ferromagnetos, os estados dos spins dos elétrons supercondutores podem ser divididos, causando uma dependência com a orientação da magnetização das camadas FI. Como a espessura do SC em questão é muito pequena, o campo de troca médio  $\bar{h}$  pode ser considerado homogêneo na camada SC e dependente do ângulo  $\theta$  entre os momentos magnéticos  $M1$  e  $M2$  das camadas ferromagnéticas. Se o campo  $\bar{h}$  sentido pelo SC for maior que o limite de Clogston-Chandrasekhar, ou seja, maior que  $\Delta/\sqrt{2}\mu_B$ , em que  $\Delta$  é o gap supercondutor e  $\mu_B$  o magneton de Bohr, o material SC se encontrará no estado normal quando o ângulo entre as camadas FI for  $\theta = 0$  (estado paralelo). Conseguindo controlar separadamente a magnetização das camadas FI de modo que o ângulo entre  $M1$  e  $M2$  seja  $\theta = \pi$  (estado antiparalelo), um cancelamento parcial ou completo dos campos de troca ocorre, ocasionando a restauração do estado supercondutor quando  $\bar{h}$  for menor que o limite de Clogston-Chandrasekhar.

Na primeira parte deste trabalho é proposto o estudo da válvula de spin supercondutora de estrutura GdN/NbN/GdN crescida por *sputtering* reativo. Várias amostras com diferentes espessuras do espaçador NbN ( $d_{NbN}$ ) foram crescidas a fim de se observar o SSE. Além do efeito guiado pela magnetização das camadas ferromagnéticas, foram realizadas medidas de resistência em função da temperatura (RxT) para análise da variação da temperatura crítica entre o estado paralelo e anti-paralelo da junção  $\Delta T_C = T_C^{AP} - T_C^P$ , e também medidas de susceptibilidade magnética e magnetorresistência para investigar o acoplamento entre as camadas ferromagnéticas.

Como segunda parte desta tese, apresentamos uma investigação experimental da população e da mobilidade de cargas magnéticas (ou monopolos magnéticos) em função da distância lateral e longitudinal entre nanomagnetos em redes de gelo de spin artificiais (GSA) unidirecionais. As análises foram realizadas por medidas de microscopia de força magnética (MFM) controlada por campo magnético externo em cinco amostras com espaçamento diferentes entre as nanoilhas. Estes sistemas são frequentemente usados para aplicações em lógica nanomagnética em dispositivos spintrônicos e arquitetura de dispositivos de magnetricidade, com decaimento energético de cadeias para dar mobilidade às cargas magnéticas. Trabalhos anteriores [7] mostraram que, em função de interações entre vizinhos próximos, um arranjo unidirecional de nanomagnetos se comportam como um sistema artificial de gelo de spin, com surgimento de cargas magnéticas e cordas energéticas de baixa tensão conectando-as.

Sistemas GSAs unidirecionais podem ainda ser combinados com materiais supercondutores, de modo que a emergência de cargas magnéticas, assim como a orientação fer-

romagnética ou antiferromagnética das nanoilhas, possam ser utilizadas no controle da temperatura crítica do supercondutor. Considerando redes de nanoilhas unidirecionais espaçadas lateralmente por uma distância  $d_x$  sobre um supercondutor, o efeito de campo de troca pode ser somado na orientação ferromagnética, diminuindo ou aniquilando totalmente o estado supercondutor. Caso a orientação das nanoilhas se tornem antiferromagnética por aplicação de um campo externo, um possível cancelamento do campo de troca entre os nanomagnetos pode restaurar as propriedades supercondutoras do material, tornando possível o *spin switch* por efeito de proximidade lateral. Nossos resultados podem ser úteis na construção de dispositivos lógicos nanomagnéticos, e trazem novas visões sobre o melhor projeto para criação e transporte de carga magnética sob baixo campo externo para aplicação em magnetometria e dispositivos de memória criogênica.

## 2 Magnetismo

### 2.1 Momento magnético

A origem das propriedades magnéticas da matéria, em uma primeira abordagem, está relacionada com a existência de elétrons que se movem ao redor de seus núcleos atômicos. Quando um material é submetido a um campo magnético, os elétrons sofrem a ação de uma força magnética, e seu movimento em torno das linhas de campo é alterado. Considere um elétron em um movimento circular com campo magnético aplicado perpendicularmente à sua velocidade conforme mostra a figura 2.1.

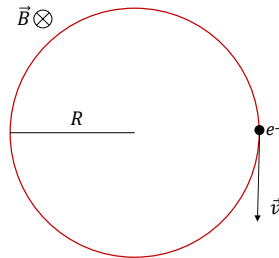


Figura 2.1: Trajetória circular de raio  $R$  referente a um elétron de carga  $e$  e velocidade  $v$  em um campo magnético  $\vec{B}$ .

Esta situação é equivalente a um loop de corrente  $i$ , no qual o movimento orbital do elétron dá origem a um momento de dipolo magnético. Assumindo uma corrente em torno de um *loop* infinitesimal de área  $|dA|$ , então o momento magnético correspondente é dado por

$$d\vec{\mu} = id\vec{A}. \quad (2.1)$$

A direção do vetor área, dado pela regra da mão direita, é normal ao *loop* como mostra a figura 2.2.

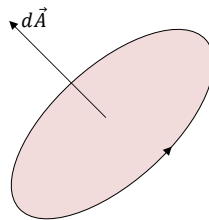


Figura 2.2: Vetor área  $d\vec{A}$  normal ao plano orbital descrito pelo elétron.

Como os *loops* de corrente da vizinhança se cancelam, deixando apenas uma corrente de tamanho

finito, é possível calcular  $d\vec{\mu}$  por

$$\vec{\mu} = \int d\vec{\mu} = i \int d\vec{A} \quad (2.2)$$

## 2.2 Dipolo magnético

O dipolo magnético é definido como o momento magnético de uma barra magnética no limite de um comprimento infinitesimal ou como o momento de um *loop* de corrente no limite de uma área pequena, ambos com momento finito. A energia de um dipolo magnético é tomada como nula quando o dipolo for perpendicular ao campo magnético, logo, o trabalho gasto para girar o dipolo em um campo  $\vec{H}$  é

$$E = \int_{\pi/2}^0 \vec{\mu} \mu_0 \vec{H} \sin\theta d\theta = -\mu_0(\vec{\mu} \cdot \vec{H}) = -\vec{\mu} \cdot \vec{B}, \quad (2.3)$$

com  $\theta$  sendo o ângulo entre o momento magnético e o campo magnético externo  $\vec{H}$  e  $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ T} \cdot \text{m}/\text{A}$  a permeabilidade magnética do vácuo. Além de carga elétrica, o elétron possui um momento de dipolo bem definido chamado magneton de Bohr. Considere um elétron de carga  $-e$  e massa  $m_e$  efetuando um movimento circular em torno do núcleo de carga  $+e$  (átomo de hidrogênio). A corrente  $i$  em torno do átomo é

$$i = \frac{-e}{\tau}, \quad (2.4)$$

em que  $\tau = 2\pi R/v$  é o período orbital,  $v$  a velocidade do elétron e  $R$  o raio da trajetória circular. A magnitude do momento angular do elétron deve ser igual a  $\hbar$  no estado fundamental, de modo que

$$\mu = m_e R v = \hbar \quad (2.5)$$

$\therefore$

$$\mu = \frac{-e\hbar}{2m_e} = \pi R i \equiv \mu_B = 9,27 \times 10^{-24} \text{ A} \cdot \text{m}^2 \quad (2.6)$$

que representa a magnitude do momento dipolar magnético de um elétron causado ou pelo movimento orbital ou pelo momento angular de spin.

## 2.3 Magnetização e indução magnética

Na eletrostática, a polarização  $\vec{P}$  dos momentos de dipolos elétricos total é definida em termos do volume, ou seja

$$\vec{P} = \frac{1}{V} \sum_i \vec{P}_i. \quad (2.7)$$

O análogo ocorre para o caso magnético, sendo

$$\vec{M} = \frac{1}{V} \sum_i \vec{\mu}_i, \quad (2.8)$$

em que  $\vec{M}$  é a magnetização do material e representa, em analogia ao caso eletrostático, a polarização dos momentos magnéticos no volume da amostra. A magnetização é uma propriedade do material que depende tanto dos momentos magnéticos individuais que constituem os íons e moléculas, quanto da interação entre eles. Os momentos aparecem nos átomos que possuem camadas eletrônicas incompletas e que a soma sobre os momentos magnéticos seja diferente de zero, ou seja, se os momentos apresentarem direções aleatórias (ver figura 2.3).

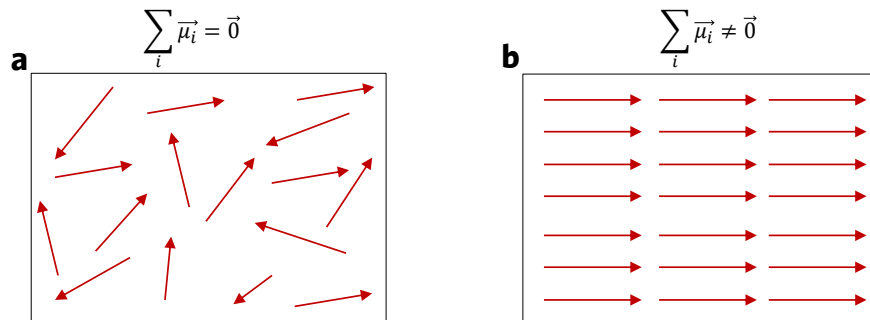


Figura 2.3: Ordenação dos momentos magnéticos em um material (a) desmagnetizado e (b) magnetizado.

Quando um campo magnético  $\vec{H}$  é aplicado em um material, a resposta do material é chamada de indução magnética ou densidade de fluxo magnético  $\vec{B}$ . No vácuo não existe magnetização, de modo que o campo magnético pode ser descrito pela relação linear

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H}. \quad (2.9)$$

Em um material magnético,  $\vec{B}$  e  $\vec{H}$  podem ser diferentes em magnitude e em direção devido à magnetização do material, portanto a relação geral é dada por

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}). \quad (2.10)$$

Considerando que a magnetização do material possui um comportamento linear e isotrópico com o campo magnético, verifica-se que

$$\vec{M} = \chi\vec{H}, \quad (2.11)$$

em que  $\chi$  é a susceptibilidade magnética. Neste caso, a relação linear entre  $\vec{B}$  e  $\vec{H}$  permanece inalterada

$$\vec{B} = \mu_0(1 + \chi)\vec{H}, \quad (2.12)$$

em que  $\mu_r = 1 + \chi$  é a permeabilidade relativa do material.

## 2.4 Átomos em um campo magnético

O hamiltoniano que descreve um átomo que contém  $Z$  elétrons é dado por

$$\mathcal{H} = \sum_{i=1}^Z \left( \frac{p^2}{2m} + V_i \right), \quad (2.13)$$

em que a quantidade  $p^2/2m$  é a energia cinética e  $V_i$  a energia potencial dos elétrons que constituem o átomo. Na presença de um campo magnético dado por

$$\vec{B} = \nabla \times \vec{A}, \quad (2.14)$$

com  $\vec{A}$  sendo o potencial vetor, que no calibre de Coulomb pode ser tomado como  $\nabla \cdot \vec{A} = 0$  e o potencial vetor pode ser escrito como  $\vec{A}(\vec{r}) = 1/2(\vec{B} \times \vec{r})$ , a energia cinética modificada passa a ser

$$Ec = \frac{1}{2m} [\vec{p} + e\vec{A}(\vec{r})]^2 = \frac{1}{2m} [\vec{p}^2 + e(\vec{p} \cdot \vec{A} + \vec{A} \cdot \vec{p}) + e^2 \vec{A} \cdot \vec{A}]. \quad (2.15)$$

Sabendo que no calibre de Coulomb o operador momento  $\vec{p}$  comuta com o potencial vetor  $\vec{A}$

$$\vec{p} \cdot \vec{A} = \vec{A} \cdot \vec{p}, \quad (2.16)$$

o hamiltoniano pode ser escrito como

$$\mathcal{H} = \frac{\vec{p}_i^2}{2m} + V_i + \frac{e\vec{A} \cdot \vec{p}}{m} + \frac{e^2}{2m} \vec{A} \cdot \vec{A}. \quad (2.17)$$

O primeiro e o segundo termo da equação 2.17 representam a energia cinética e a energia potencial na ausência de campo magnético respectivamente. O terceiro termo pode ser modificado e reescrito como

$$\vec{A} \cdot \vec{p} = \frac{1}{2}(\vec{B} \times \vec{r}) \cdot \vec{p} = \frac{1}{2}\hbar\vec{L} \cdot \vec{B}, \quad (2.18)$$

em que  $\hbar\vec{L}$  é o momento angular orbital. O último termo da expressão pode ser escrito em função do campo magnético aplicado

$$\frac{e^2}{2m} \vec{A} \cdot \vec{A} = \frac{e^2}{8m} (\vec{B} \times \vec{r})^2, \quad (2.19)$$

de modo que o hamiltoniano fica

$$\mathcal{H} = \sum_i \left( \frac{p_i^2}{2m} + V_i \right) + \mu_B \vec{L} \cdot \vec{B} + \frac{e^2}{8m} \sum_i (\vec{B} \times \vec{r}_i)^2. \quad (2.20)$$

Considerando o momento angular de spin  $\vec{S}$ , o termo  $\mu_B g \vec{S} \cdot \vec{B}$  é adicionado\*, levando o hamiltoniano a

$$\mathcal{H} = \sum_i^Z \left( \frac{p_i^2}{2m} + V_i \right) + \mu_B (\vec{L} + g\vec{S}) \cdot \vec{B} + \frac{e^2}{8m} \sum_i^Z (\vec{B} \times \vec{r}_i)^2. \quad (2.21)$$

## 2.5 Efeito Zeeman

Vimos que a energia de um momento de dipolo é

$$E = -\mu_0(\vec{\mu} \cdot \vec{H}), \quad (2.22)$$

e que o momento de dipolo de uma corrente circular é dada por

$$\vec{\mu} = i\vec{A} \quad (2.23)$$

em que  $A$  é a área do plano do *loop* de corrente. Assumindo que a corrente, dada como a taxa de variação de carga em relação ao tempo, é gerada apenas pelo movimento orbital do elétron em torno do átomo, com distância  $r$  do núcleo, então o módulo da corrente pode ser tomado

---

\*Assumido como  $g=2$ , o momento de spin do elétron pode ser tomado como  $1\mu_B$ .

como

$$i = -\frac{|e|v}{2\pi r}, \quad (2.24)$$

em que  $v$  é a velocidade do elétron e  $2\pi r$  a circunferência descrita pelo mesmo. Como a área da órbita é  $A = \pi r^2$ , o momento de dipolo fica

$$\vec{\mu} = i\vec{A} = -\frac{|e|v}{2\pi r} \cdot \pi r^2 = -\frac{|e|vr}{2}. \quad (2.25)$$

Como o momento angular orbital pode assumir apenas valores  $m_\ell \hbar$ , portanto

$$v = \frac{m_\ell \hbar}{m_e r}. \quad (2.26)$$

Substituindo a equação 2.26 em 2.25, o momento de dipolo fica

$$\mu = -\mu_B m_\ell. \quad (2.27)$$

Este é o momento angular orbital no mesmo eixo do campo magnético. A expressão para a magnitude do momento é

$$\mu = \sqrt{\ell(\ell + 1)}\mu_B, \quad (2.28)$$

de modo que a energia pode ser escrita como

$$E = \mu_B m_\ell B. \quad (2.29)$$

Tomando o momento angular de spin, que possui componente  $-g\mu_B m_S$  ao longo do eixo do campo e magnitude

$$\mu = \sqrt{S(S + 1)}g\mu_B, \quad (2.30)$$

a energia do elétron em um campo magnético fica

$$E = g\mu_B m_S B. \quad (2.31)$$

Portanto, quando um elétron, de momento orbital diferente de zero, é submetido a um campo magnético, seu momento é modificado e seus níveis de energia são divididos em uma quantidade  $\pm g\mu_B m_S B$ . Este fenômeno é conhecido como efeito Zeeman [8].

## 2.6 Paramagnetismo de Pauli

Ao analisar a resposta de sistemas magnéticos em sólidos, a interação entre os spins deve ser tomada em consideração devido à dupla ocupação de cada estado no espaço  $k$  por spins *up*  $N\uparrow$  e spins *down*  $N\downarrow$  (princípio da exclusão de Pauli). Como vimos na seção 2.5, que ao aplicar campo magnético, a energia dos estados com spin  $+1/2$  e  $-1/2$  são alteradas em direções opostas por uma quantidade  $\pm g\mu_B m_S B$ . Desta forma, os elétrons com spins paralelos ao campo terão sua densidade de estados  $D(E_F)$  deslocada para cima do nível de Fermi, enquanto os elétrons opostos ao campo ficarão com a densidade de estados abaixo do nível de Fermi, como mostra a figura 2.4(b). Este fenômeno é conhecido como paramagnetismo de Pauli.

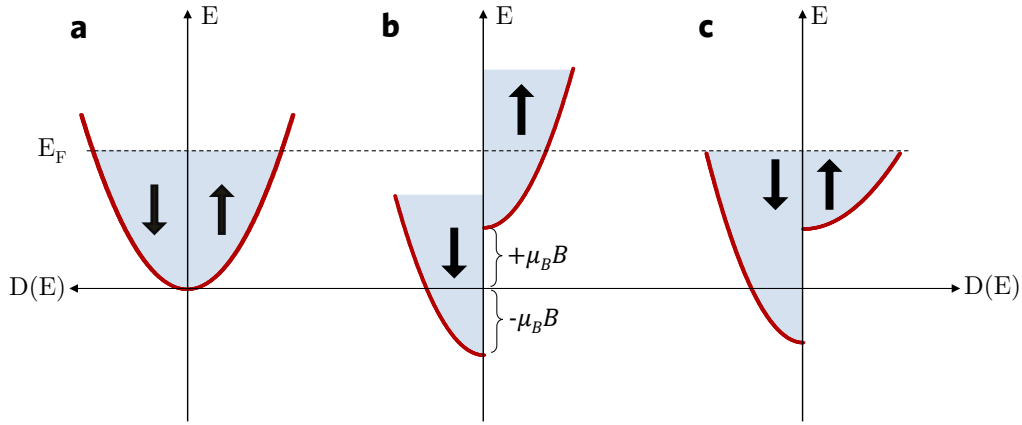


Figura 2.4: Representação da origem do paramagnetismo de Pauli de um gás de elétrons livres relacionando a densidade de estados  $D(E_F)$  com a energia  $E$ . As setas indicam a direção do spin, que na ausência de campo, são iguais como é mostrado em (a). Em (b) a situação de campo magnético aplicado verticalmente para cima é mostrada, de modo que a densidade de estados é dividida em relação à orientação do spin, totalizando uma quantidade de  $2\mu_B B$ . (c) mostra a situação de menor energia atingida com ambas densidades de estado no mesmo nível de Fermi.

Note que na ausência de campo aplicado, tem-se  $N\uparrow = N\downarrow$  como mostra a figura 2.4(a). Para minimizar a energia do sistema, uma faixa de elétrons inverte seu spin de modo a igualar o nível de Fermi (figura 2.4c), e um desbalanço de spins *up* e *down* é estabelecido. Nesta configuração, o número de spins  $+1/2$  fica menor que o número de elétrons com spin  $-1/2$ . O número total de spin *down* e *up* é dado respectivamente por

$$N\downarrow = \frac{1}{2} \int_{-\mu_B B}^{E_F} D(E + \mu_B B) dE \quad (2.32)$$

$$N \uparrow = \frac{1}{2} \int_{+\mu_B B}^{E_F} D(E - \mu_B B) dE. \quad (2.33)$$

O momento magnético líquido é igual ao número de elétrons  $\Delta N = N \downarrow - N \uparrow$  com energia no intervalo próximo ao nível de Fermi, ou seja

$$\mu = \mu_B \Delta N = \frac{\mu_B}{2} \left[ \int_{-\mu_B B}^{E_F} D(E + \mu_B B) dE - \int_{+\mu_B B}^{E_F} D(E - \mu_B B) dE \right]. \quad (2.34)$$

Mudando as variáveis, o momento magnético fica

$$\mu = \frac{\mu_B}{2} \int_{E_F - \mu_B B}^{E_F + \mu_B B} D(E_F) dE. \quad (2.35)$$

O resultado da integral 2.35 é equivalente a área de uma fita de comprimento  $2\mu_B B$  com centro em  $E_F$  e altura  $D(E_F)$ , ou seja

$$\mu = \mu_B^2 D(E_F) B. \quad (2.36)$$

Portanto a magnetização fica

$$M = \frac{\mu}{V} = \frac{1}{V} \mu_B^2 D(E_F), \quad (2.37)$$

e a susceptibilidade de Pauli

$$\chi_P = \frac{\mu_0 M}{B} = \frac{1}{V} \mu_0 \mu_B^2 D(E_F). \quad (2.38)$$

Como a densidade de estados no nível de Fermi é dado por [9]

$$D(E_F) = \frac{3}{2} \frac{N}{E_F}, \quad (2.39)$$

com  $N = N \downarrow + N \uparrow$ . A susceptibilidade pode então ser escrita como

$$\chi_P = \frac{3\mu_0 \mu_B^2 N}{2E_F V}. \quad (2.40)$$

Além do paramagnetismo devido ao momento angular de spin, existe também a contribuição diamagnética para a susceptibilidade devido ao movimento orbital dos elétrons. Este efeito é chamado de diamagnetismo de Landau  $\chi_L$ , e sua relação com  $\chi_P$  é [10]

$$\chi_L = -\frac{1}{3}\chi_P. \quad (2.41)$$

## 2.7 Interação dipolar

A primeira interação que se espera ter um papel importante em materiais magnéticos é a dipolar. O campo magnético gerado por um dipolo  $\vec{\mu}_1$  é

$$\vec{B}(\vec{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi r^3} \left[ \vec{\mu}_1 - 3 \frac{(\vec{\mu}_1 \cdot \vec{r})\vec{r}}{r^2} \right]. \quad (2.42)$$

Ao adicionar um segundo dipolo  $\vec{\mu}_2$ , a energia do sistema é descrita por

$$E = \frac{\mu_0}{4\pi r^3} \left[ \vec{\mu}_1 \cdot \vec{\mu}_2 - 3 \frac{(\vec{\mu}_1 \cdot \vec{r})(\vec{\mu}_2 \cdot \vec{r})}{r^2} \right], \quad (2.43)$$

que depende tanto da distância quanto do grau de alinhamento entre os dipolos. Considerando dois dipolos paralelos a uma distância de  $1 \text{ \AA}$ , sendo  $\mu_1 = \mu_2 = \mu_B$ , a energia do sistema é estimada em  $\approx 53 \text{ } \mu\text{eV}$ . A temperatura correspondente ( $T = E/k_B$ ) é da ordem de  $\approx 0,6 \text{ K}$ . Portanto, somente a interação dipolar não é suficiente para causar ferromagnetismo, uma vez que alguns materiais como ferro e cobalto apresentam propriedades ferromagnéticas em temperaturas muito mais elevadas que o estimado em centenas de vezes (acima de  $1000 \text{ K}$  [9]).

## 2.8 Interação de troca

Considere dois átomos de hidrogênio separados por uma distância  $r_{ab}$  com seus respectivos elétrons nas posições  $\vec{r}_1$  e  $\vec{r}_2$  como mostra a figura 2.5.

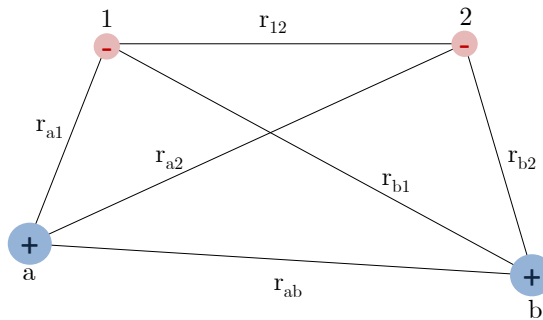


Figura 2.5: Coordenadas para dois átomos de hidrogênio de núcleos a e b separados por uma distância  $r_{ba}$  com dois elétrons 1 e 2.

O hamiltoniano que descreve os dois elétrons pode ser encontrado somando as ener-

gias de cada átomo separadamente, ou seja

$$\mathcal{H} = \frac{p_1^2}{2m} + \frac{p_2^2}{2m} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{1}{r_{a1}} + \frac{1}{r_{a2}} + \frac{1}{r_{b1}} + \frac{1}{r_{b2}} \right) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{1}{r_{ab}} + \frac{1}{r_{12}} \right), \quad (2.44)$$

em que o primeiro e o segundo termo são as energias cinéticas dos elétrons. O terceiro termo representa o potencial atrativo dos elétrons com os núcleos a e b. O quarto termo é a energia potencial da interação elétron-elétron com distância  $r_{12}$  e núcleo-núcleo ( $r_{ab}$ ), ambas repulsivas. Este modelo [11] estabelece que os 2 elétrons estão ligados aos dois núcleos a e b com a mesma probabilidade, logo, a função de onda dos elétrons pode ser escrita como o produto dos estados individuais. Porém, o estado de spin é anti-simétrico na troca dos elétrons para o estado singlete  $\chi_S$  e simétrico para o estado tripleto  $\chi_T$  (ver figura 2.6).

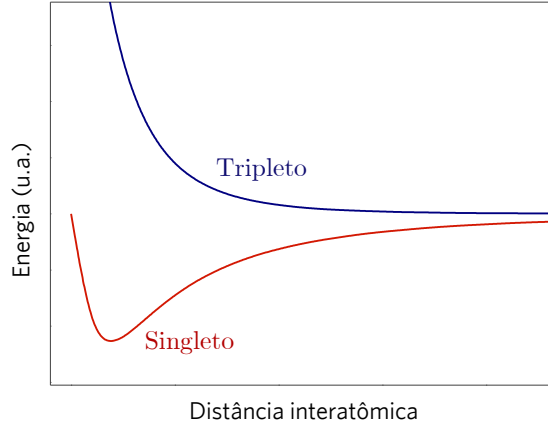


Figura 2.6: Energia de dois elétrons considerando o estado tripleto (azul) e singlete (vermelho) em função da distância internuclear  $r_{ba}$ .

Levando em conta a natureza fermiônica dos elétrons, a função de onda para o estado singlete  $\psi_S$  e tripleto  $\psi_T$  podem ser escritas respectivamente como

$$\psi_S = \frac{1}{\sqrt{2}} [\psi_a(\vec{r}_1)\psi_b(\vec{r}_2) + \psi_a(\vec{r}_2)\psi_b(\vec{r}_1)] \cdot \chi_S \quad (2.45)$$

$$\psi_T = \frac{1}{\sqrt{2}} [\psi_a(\vec{r}_1)\psi_b(\vec{r}_2) - \psi_a(\vec{r}_2)\psi_b(\vec{r}_1)] \cdot \chi_T. \quad (2.46)$$

As energias correspondentes para os dois estados, assumindo que  $\chi_S$  e  $\chi_T$  estão normalizadas, são

$$E_S = \int \psi_S^* \mathcal{H} \psi_S d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (2.47)$$

$$E_T = \int \psi_T^* \mathcal{H} \psi_T d\vec{r}_1 d\vec{r}_2. \quad (2.48)$$

A magnitude do momento angular de spin de elétron individual é

$$s_1^2 = s_2^2 = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{2} + 1 \right) = \frac{3}{4}, \quad (2.49)$$

de modo que os autovalores de  $S^2$  são

$$S^2 = (S_1 + S_2)^2 = \begin{cases} 0 & \text{para } S=0 \text{ (singlete)} \\ 2 & \text{para } S=1 \text{ (triplete)} \end{cases}.$$

Portanto os possíveis valores para  $\vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2$  são

$$\vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2 = \begin{cases} -3/4 & \text{singlete} \\ +1/4 & \text{triplete} \end{cases}.$$

A hamiltoniana efetiva então pode ser escrita como

$$\mathcal{H} = \left( \frac{1}{4} E_S + \frac{3}{4} E_T \right) - (E_S - E_T) \vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2, \quad (2.50)$$

no qual o primeiro termo é constante. O segundo termo é dependente do spin e surge de efeitos puramente eletrostáticos entre um estado quântico e sua função de onda correspondente.

Definindo a constante de troca como

$$J = \frac{E_S - E_T}{2} = \int \psi_a^*(\vec{r}_1) \psi_b^*(\vec{r}_2) \mathcal{H} \psi_a(\vec{r}_2) \psi_b(\vec{r}_1) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2, \quad (2.51)$$

então a hamiltoniana pode ser escrita como

$$\mathcal{H} = -2J \vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2. \quad (2.52)$$

Note que se  $J > 0$ , então  $E_S > E_T$  e a energia é minimizada para o estado triplete, ou seja, para a orientação ferromagnética ( $\uparrow\uparrow$ ). Caso  $J < 0$ , então  $E_S < E_T$  e o estado singlete (anti-ferromagnético  $\uparrow\downarrow$ ) é energeticamente favorecido. Assumindo que a interação de troca é aplicada apenas entre primeiros vizinhos, a hamiltoniana generalizada para o caso de um sólido, também conhecida como hamiltoniana de Heisenberg[12, 13, 14], fica

$$\mathcal{H} = - \sum_{ij} J_{ij} \vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2, \quad (2.53)$$

com  $J_{ij}$  sendo a constante de troca entre os spins  $i$  e  $j$ . O fator 2 é omitido uma vez que o somatório é feito aos pares.

## 2.9 Spintrônica

### 2.9.1 Válvula de spin

Uma válvula de spin consiste em duas camadas de materiais ferromagnéticos (FM) separados por um metal normal não magnético (NM) como mostra a figura 2.7.

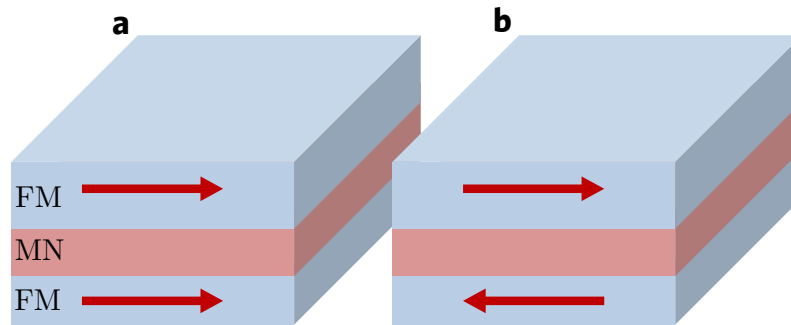


Figura 2.7: Válvula de spin com uma camada de metal normal (MN) intercalado entre dois materiais ferromagnéticos (FM). As setas vermelhas indicam a orientação de magnetização das camadas ferromagnéticas no estado (a) paralelo e (b) anti-paralelo.

Quando este tipo de estrutura é submetida a campos magnéticos externos, sua resistência pode sofrer alterações dependendo da orientação magnética paralela (P) e anti-paralela (AP) das camadas ferromagnéticas. Este fenômeno é conhecido como magnetorresistência (MR) [2] e é definida como

$$MR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P}, \quad (2.54)$$

em que  $R_{AP}$  e  $R_P$  representam a resistência da estrutura nos estados anti-paralelo e paralelo respectivamente.

A mudança na resistência causada pela aplicação de campo magnético é resultado da diferença da condutividade encontrada pelos elétrons ao atravessarem a estrutura. Como vimos nas seções anteriores, o número de spins *up* e *down* no nível de Fermi é igual em um metal

normal, portanto, os elétrons o atravessam com a mesma probabilidade. Entretanto, em um metal spin polarizado existem mais estados no nível de Fermi em uma direção do que em outra [15]. Como ilustra a figura 2.8(a), em um processo de tunelamento no qual o spin do elétron é conservado, considerando que as camadas FM estejam com magnetização paralela para baixo, os elétrons com spin *up*  $\uparrow$  passam a ser os responsáveis pela condução através da estrutura uma vez que estados  $\uparrow$  continuam a existir no nível de Fermi. Por outro lado, os elétrons com spin *down*  $\downarrow$  são fortemente espalhados, de modo que esta configuração gera uma baixa resistência na válvula. Se as camadas FM estiverem alinhadas de forma anti-paralela, a densidade de estados para spins *up* e *down* se invertem, gerando um eventual espalhamento para ambos elétrons spin *up* e *down*, ou na primeira, ou na segunda camada FM como mostra a figura 2.8 (b). Esta configuração gera uma alta resistência na estrutura [16].

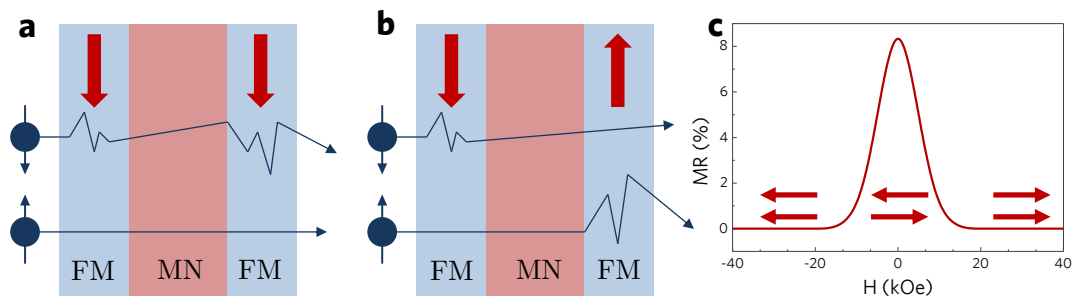


Figura 2.8: Efeito MR. Representação esquemática do espalhamento da corrente de spin em uma válvula de spin em relação à orientação de magnetização (a) paralela das camadas FM apresentando baixo espalhamento para elétrons com spins *up* (baixa resistência) e (b) alto espalhamento dos elétrons para orientação anti-paralela (alta resistência). (c) Dependência da resistência com o campo aplicado para uma estrutura de válvula de spin típica.

A aplicação da MR pela utilização de válvulas de spin em 1997 pela IBM [17] mudou o panorama do armazenamento magnético de dados aumentando drasticamente a capacidade de armazenamento. Isso ajudou a preparar o caminho para alguns dos dispositivos mais populares de hoje, e foi a primeira aplicação de dispositivos spintrônicos à tecnologia cotidiana. Dispositivos de memórias como MRAM (*Magneto-resistive Random Access Memory*) utilizam deste sistema para armazenar dados [18] pois a diferença de resistência gerada pelas duas configurações de magnetização das camadas ferromagnéticas pode ser interpretada por como um código binário, uma vez que o estado paralelo, de menor resistividade, pode ser lido como 0 e o estado anti-paralelo pode ser lido como 1.

Para que a válvula de spin tenha de fato dois estados de magnetização P e AP, é necessário que apenas um eletrodo de material ferromagnético altere a orientação dos spins,

enquanto a outra camada permaneça fixa. A camada fixa (*PL-Pinned layer*) é conhecida como camada de referência, por ser utilizada como referência para a camada livre durante a leitura. A PL pode ser fixada por uma camada de material anti-ferromagnética (AFM) adjacente a ela, tal como PtMn, IrMn ou CoO, de modo que sua magnetização não mude de direção durante a aplicação de campo magnético. Em uma estrutura mais elaborada, a camada AFM pode ser feita de duas subcamadas separadas por Rutênio para formar uma estrutura de antiferromagneto sintético (SAF), pois isto ajuda a neutralizar o campo magnético na camada livre [19]. Uma outra maneira de ativar diferentes coercividades ( $H_{c1} \neq H_{c2}$ ) e conseqüentemente diferentes estados de magnetização P e AP, é escolhendo para cada camada FM materiais ferromagnéticos duros e macios, ou caso sejam do mesmo material, fazer com que as camadas ferromagnéticas tenham espessuras diferentes [20].

### 2.9.2 Gelo de spin natural e artificial

Estudos realizados sobre o gelo da água em 1933, por Giauque, mostraram uma entropia residual mesmo em temperaturas baixas [21, 22]. A explicação veio com Pauling em 1935, ao considerar diferentes configurações nas posições do átomo de hidrogênio nas moléculas de  $H_2O$  [23]. Na estrutura cristalina do gelo, cada átomo de oxigênio está posicionado no centro de um tetraedro fazendo ligações com outros quatro átomos de oxigênio mais próximos, como mostra a figura 2.9. Como o comprimento da ligação O–O é o dobro do comprimento O–H, o próton é deslocado do centro da ligação O–O e conseqüentemente passa a se posicionar mais próximo de um dos oxigênios.

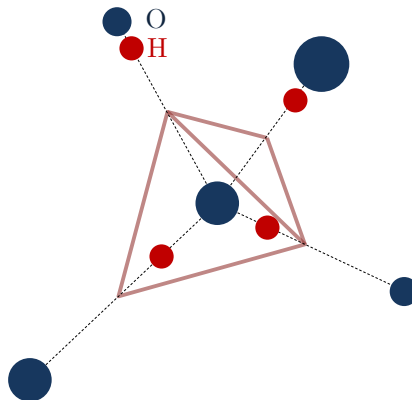


Figura 2.9: Estrutura tetraédrica do gelo da água segundo a regra do gelo, com dois átomos de hidrogênio próximos e outros dois afastados para cada átomo de oxigênio.

Este restringimento geométrico implica na regra do gelo [24], onde cada átomo de oxigênio

possui dois hidrogênio mais distantes e outros dois mais próximos. Como o sistema descrito é incapaz de minimizar simultaneamente todas as interações entre pares, ocorre a denominada frustração geométrica, que leva a uma degenerescência do estado fundamental do gelo da água, e conseqüentemente a explicação da entropia residual.

A regra do gelo também pode ser aplicada em sistemas magnéticos, no qual o spin do elétron deve ser levado em consideração, na condição de dois spins apontando para o centro do tetraedro e dois apontando para fora. O primeiro trabalho experimental que comprovou a regra do gelo foi feito em 1999 por Ramirez [25], no qual mostrou um estado fundamental degenerado de entropia residual de  $S_0 = 1,86 J/K \cdot mol$  em  $Dy_2Ti_2O_7$ , como esperado pelo modelo de Pauling. Um dos trabalhos mais motivadores da área foi realizado por Castelnovo e colaboradores [26], que mostraram que monopolos magnéticos podem surgir como partículas emergentes em sistemas frustrados a partir de excitações do estado fundamental. Considerando o comportamento dos spins como tipo Ising [27]  $\vec{\mu}_i = \mu S_i \hat{e}_i$ , no qual  $S_i = \pm 1$ , as propriedades do sistema podem ser descritas pela interação de troca entre primeiros vizinhos e pela interação dipolar, isto é

$$\mathcal{H} = -J \sum_{ij} \hat{e}_i \cdot \hat{e}_j S_i S_j + D d^3 \sum_{i>j} \left( \frac{\hat{e}_i \cdot \hat{e}_j}{|\vec{r}_{ij}|^3} - \frac{3(\hat{e}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\hat{e}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{|\vec{r}_{ij}|^5} \right) S_i S_j, \quad (2.55)$$

em que  $D = \mu_0 \mu^2 / 4\pi d^3$  é a constante de interação dipolar,  $d$  o espaçamento de rede e  $\vec{r}_{ij}$  a posição dos spins na rede. O trabalho de Castelnovo abriu caminho para vários trabalhos, incluindo a criação de sistemas construídos por técnicas litográficas cuja frustração e aparição de monopolos magnéticos pudessem ser controladas por diversos tipos de geometrias [28, 29, 30]. Estes novos sistemas foram chamados de gelos de spin artificiais (GSA)[31], e consistem em redes bidimensionais de nanoilhas de materiais ferromagnéticos dispostos em configurações que apresentem frustração geométrica. Um aspecto importante dos GSAs é a existência de uma forte anisotropia devido ao formato das estruturas, fazendo com que os spins se alinhem na direção das nanoilhas em um monodomínio. A figura 2.10 mostra os exemplos de redes de GSAs mais encontrados na literatura.

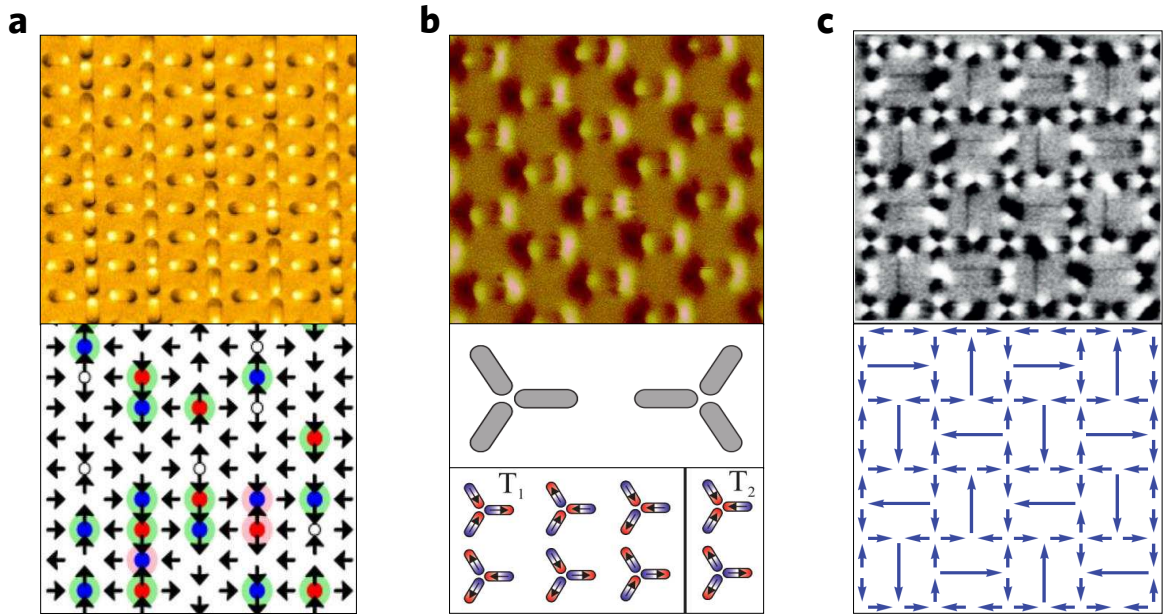


Figura 2.10: (a) Rede de gelo de spin artificial em configuração retangular com razão de aspecto  $\gamma = a/b = \sqrt{4}$  [32]. A imagem superior representa o comportamento magnético experimental obtido via microscopia de força magnética (MFM) e a imagem inferior a representação esquemática das orientações dos spins nas nanoilhas. (b) Representa a rede de hexagonal de Kagome [33] e (c) uma rede quadrada de shakti [34].

Do ponto de vista tecnológico, com os recentes aperfeiçoamentos nas técnicas de nanofabricação e tecnologia de vácuo, a produção de estruturas em escala nanométrica vem se tornando cada vez mais fácil e eficaz, permitindo a manipulação de estruturas de domínios magnéticos e possibilitando um enorme aumento na densidade de armazenamento de informação e velocidade de leitura de dispositivos de memória [35, 36, 37, 38].

### 2.9.3 Gelo de spin unidirecional

No contexto das nanoilhas unidirecionais, o trabalho realizado por Loreto et al. [7] mostrou que um arranjo unidirecional particular de nanomagnetos também se comporta como GSAs devido a frustrações com os primeiros vizinhos, com geração de pares de carga magnética e de cordas energéticas que os conecta. A competição da interação dipolar entre nanomagnetos horizontais e verticais em função do espaçamento entre eles, traz uma degenerescência para o sistema, aumentando a probabilidade na emergência de cargas magnéticas, e ao mesmo tempo, diminuindo a interação entre elas, dando-lhes mais liberdade para se moverem sob o campo magnético externo.

Um aspecto vantajoso para as redes unidirecionais é a baixa energia da corda comparada com as redes de GSAs tridimensionais e retangulares [39, 40, 41, 32]. Enquanto nos sistemas tridimensionais e retangulares as cordas têm muitos caminhos possíveis para conectar um monopolo ao seu anti-monopolo, produzindo um efeito entrópico alto [42, 43], nos sistemas unidirecionais tem-se apenas uma única corda restrita a conectar as cargas opostas do par ao longo de uma dada linha de dipolos na direção  $y$  como pode ser visto na figura 2.11. Portanto os pares de carga magnética podem viajar de maneira unidirecional através dos nanofios magnéticos formados por sucessivos nanomagnetos longitudinais, de modo que seu movimento pode ser facilmente mapeado e manipulado.

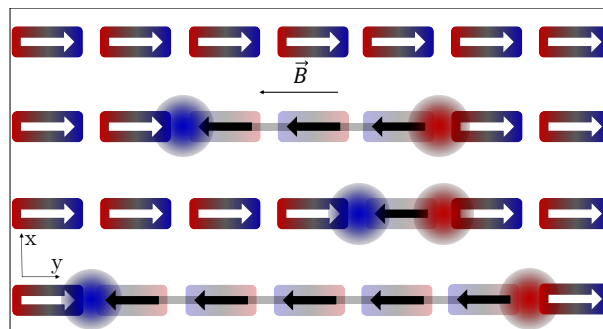


Figura 2.11: Criação de cargas magnéticas (círculos vermelhos e azuis) ligadas por cordas energéticas por aplicação de campo magnético externo. A cadeia de dipolos invertidos encontrada se destacada representando a corda energética. Como a energia das cordas em redes unidirecionais são muito baixas, as cargas magnéticas se encontram essencialmente livres para movimentar-se na direção  $y$ , desde que esta energia seja suficiente para superar a interação Coulombiana entre elas.

# 3 Supercondutividade

## 3.1 A descoberta

A descoberta de materiais supercondutores foi possível graças ao físico holandês Heike Onnes, que em 1908 obteve com sucesso a liquefação do hélio no laboratório de baixa temperatura da Universidade de Leiden [44]. Como a temperatura do hélio líquido é de 4,2K sob pressão atmosférica, foi possível observar o comportamento da resistividade elétrica de materiais quando submetido a baixas temperaturas. O fenômeno da supercondutividade, na qual a resistência elétrica de materiais vai a zero em baixas temperaturas, é um dos mais sofisticados assuntos no ramo da física da matéria condensada. O primeiro material a ser estudado por Onnes foi o Mercúrio em 1911, uma vez que amostras puras de Hg podiam ser facilmente obtidas através de destilação múltipla em laboratório. Onnes percebeu uma diminuição abrupta da resistência elétrica do mercúrio a uma temperatura  $T_c=4,2K$ . Esta temperatura, cuja resistência elétrica vai a zero, é chamada de temperatura crítica  $T_c$  ou temperatura de transição [45].

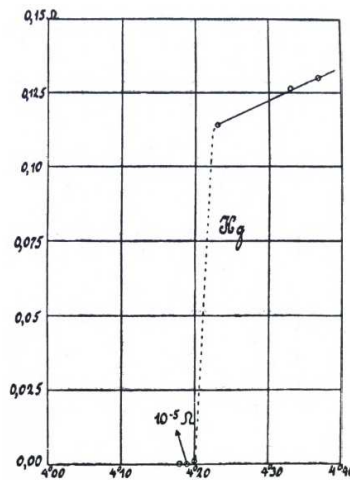


Figura 3.1: Curva  $R(\text{ohms}) \times T(\text{Kelvin})$  do mercúrio obtida por Onnes em 1911 mostrando a transição para o estado supercondutor a uma temperatura de 4,2K.

Após sua descoberta, Onnes também realizou o mesmo experimento em outros metais como Au e Pt, testando também os mesmos metais com diferentes graus de pureza. Este trabalho levou Onnes a ganhar o prêmio Nobel em 1913 [46].

## 3.2 Efeito Meissner-Ochsenfeld

Em 1933, foi descoberto que um material no estado supercondutor, submetido a um campo externo, expulsa de seu interior todo fluxo magnético. Em homenagem ao seus descobridores Walter Meissner e Robert Ochsenfeld, este fenômeno recebeu o nome de efeito Meissner-Ochsenfeld, e é importante para o estudo das propriedades magnéticas únicas de supercondutores [47].

Como mostra a figura 3.2 (a), na tentativa de anular em seu interior qualquer campo magnético resultante, um material supercondutor, quando submetido a um campo externo, induz em sua superfície correntes elétricas de modo que esta corrente cria uma densidade de fluxo  $\vec{B}$  de mesma intensidade porém sentindo oposto ao campo  $\vec{H}$ .

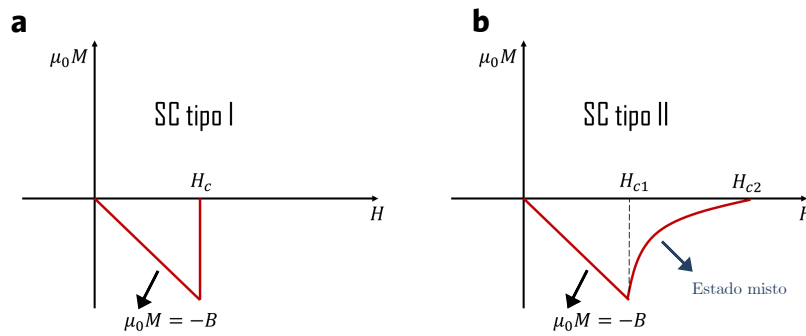


Figura 3.2: Magnetização em função do campo magnético aplicado para supercondutores (a) tipo I e (b) tipo II.

Uma vez que no interior de um supercondutor  $\vec{B} = 0$ , logo  $\vec{M} = -\vec{H}$ . Como a susceptibilidade é dada por  $\vec{M} = \chi \vec{H}$ , temos que  $\chi = -1$ , que é o maior valor possível em módulo para a susceptibilidade, caracterizando o supercondutores tipo I como um diamagneto perfeito. Nos supercondutores tipo II há uma penetração parcial do campo magnético acima de  $H_{c1}$  (campo crítico inferior) até que se atinja  $H_{c2}$  (campo crítico superior). Abrikoso'v mostra em seu trabalho de 1957 [48] que entre  $H_{c1}$  e  $H_{c2}$  o fluxo magnético penetra de forma quantizada carregando o fluxo quântico magnético, dado pela equação 3.1, no qual dentro de cada fluxo existe um vórtice de supercorrente.

$$\phi_0 = \frac{h}{2e} = 2,067 \times 10^{-15} \text{Wb}. \quad (3.1)$$

Devido a esta propriedade, supercondutores tipo II podem carregar mais densidade de corrente, e portanto, podem ser utilizados em aplicações tecnológicas que exigem altos valores de campo magnético, como por exemplo, ressonância magnética em hospitais.

### 3.3 Campo crítico

Considere um fio de material supercondutor no qual é possível passar uma corrente extremamente alta devido ao fato do fio não apresentar resistividade. Sabe-se que a corrente gera um campo magnético que, ao atingir um certo limite  $B_c(T)$ , que é uma função da temperatura, desfavorece a supercondutividade, ou seja, o estado supercondutor pode ser destruído ou por um campo magnético externo superior a um campo crítico ou pelo campo gerado pelo próprio supercondutor. Verifica-se empiricamente que

$$B_c(T) = B(0) \left[ \left( 1 - \frac{T}{T_c} \right)^2 \right], \quad (3.2)$$

que é uma lei parabólica exemplificada na figura 3.3.

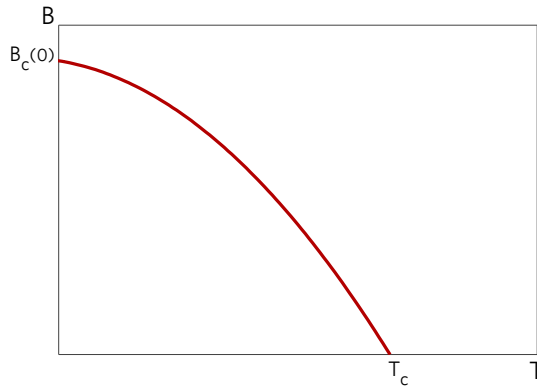


Figura 3.3: Dependência da temperatura de um supercondutor tipo I com o campo magnético aplicado. A área sob a curva representa a fase Meissner no qual o supercondutor repele todo o campo magnético de seu interior.

Associado ao campo magnético gerado pelo movimento das cargas, há também um valor máximo de densidade de corrente  $\vec{J}_c$  que pode circular em um material supercondutor. Caso a densidade de corrente gere um campo superior ao campo crítico  $B_c$ , o estado supercondutor deixará de existir.

### 3.4 Termodinâmica da fase supercondutora

Temos até aqui informações fenomenológicas suficientes sobre supercondutividade para estabelecermos algumas importantes propriedades termodinâmicas da fase supercondutora. Podemos analisar o diagrama de fase de um supercondutor da mesma maneira como conhecemos as fases de líquidos e gases já estabelecido pela equação de estado de van der Waals

[49]. Entretanto no estado supercondutor os parâmetros termodinâmicos relevantes são  $\vec{B}$  e  $\vec{M}$ . Basicamente iremos partir de um sistema (P,V) bem conhecido com o trabalho sendo calculado como

$$W = - \int P dV \quad (3.3)$$

e substituir  $P$  por  $\vec{B}$  e  $V$  por  $\mu_0 \vec{M}$ .

Considere um supercondutor tipo I com efeito Meissner completo ( $\vec{B}$  é nulo em seu interior). Tome este supercondutor e coloque-o em uma região de campo magnético nulo, e desta posição, leve-o para uma região de campo não nulo sob temperatura constante. O trabalho realizado é dado por

$$W = - \int_0^{B_a} \vec{M} \cdot d\vec{B}_a, \quad (3.4)$$

onde  $\vec{B}_a = \mu_0 \vec{H}$  é o campo aplicado. Tomando a relação  $\vec{B} = \vec{B}_a + \mu_0 \vec{M} = 0$  no interior do supercondutor, logo

$$\vec{M} = - \frac{\vec{B}_a}{\mu_0}, \quad (3.5)$$

portanto o trabalho fica

$$W = - \int_0^{B_a} \vec{M} \cdot d\vec{B}_a = \frac{\vec{B}_a^2}{2\mu_0} = \frac{\mu_0 H_c^2}{2}. \quad (3.6)$$

Este trabalho se manifesta na energia do campo magnético pela relação

$$dF = -\vec{M} \cdot d\vec{B}_a \quad (3.7)$$

no qual  $F$  é a energia livre de Gibbs. Portanto, desconsiderando a magnetização devido ao paramagnetismo fraco no supercondutor no estado normal, a diferença de energia livre para o supercondutor sob ação de campo magnético e a campo nulo é

$$F_S(\vec{B}_a) - F_S(0) = \frac{\vec{B}_a^2}{2\mu_0}. \quad (3.8)$$

Agora considere um metal não magnético no estado normal. Desconsiderando a pequena susceptibilidade, a magnetização do metal pode ser considerada  $\vec{M} = \vec{0}$ , e portanto, a energia livre não possui dependência com o campo magnético. Esta análise deve ser considerada apenas para os supercondutores tipo I. Para os supercondutores tipo II, a variação do para-

magnetismo dos elétrons de condução diminui a energia da fase normal de maneira significativa. Portanto, para um metal normal, a energia livre no campo crítico  $B_c$  é a mesma energia livre no campo nulo, ou seja

$$F_N(B_c) = F_N(0). \quad (3.9)$$

Quando ocorre a transição do estado supercondutor para o normal sob o campo crítico, a energia livre dos dois estados são iguais, ou seja

$$F_N(B_c) = F_S(B_c). \quad (3.10)$$

Então a diferença de energia livre entre o estado normal e o estado supercondutor é

$$F_N(0) - F_S(0) = \frac{B_c^2}{2\mu_0}. \quad (3.11)$$

De forma resumida

$$F_N(0) = F_N(B_c) = F_S(B_c) = F_S(0) + \frac{B_c^2}{2\mu_0}. \quad (3.12)$$

O campo crítico representa uma medida quantitativa da diferença de energia entre o estado normal e o estado supercondutor. A quantidade  $B_c^2/2\mu_0$  é chamada de energia de condensação e representa o ganho de energia livre no estado supercondutor comparado com o estado normal. Uma maneira alternativa para interpretar a equação 3.11 seria: para ir do estado normal para o supercondutor à temperatura constante, o material precisa expulsar a energia magnética, e a maior quantidade que ele pode expulsar é a diferença entre as energias livres. Tomemos como exemplo o Nb que possui  $T_c=9$  K e  $B_c = \mu_0 H_c = 0,2$  T [9]. Como é mostrado em [50], a energia de condensação é  $B_c^2/2\mu_0 = 16,6$  kJ/m<sup>3</sup>. Considerando que o Nb possui uma estrutura cristalográfica cúbica de corpo centrado (bcc) com parâmetro de rede  $a=0,33$  nm, a energia de condensação por volume atômico é de apenas  $2\mu\text{eV}/\text{átomo}$ . Esta faixa de energia com valor tão pequeno era um mistério até a vinda da teoria BCS que estabeleceu que a energia de condensação é da ordem de  $(k_B T_c)^2 D(E_F)$ , no qual  $k_B$  é a constante de Boltzmann e  $D(E_F)$  é a densidade de estados no nível de Fermi. A energia é pequena pois  $k_B T_c$  é menor que a energia de Fermi em muitas ordens de magnitude [50].

A figura 3.4 mostra o efeito do campo magnético sobre a energia livre dos estados normal e supercondutor em função do campo aplicado.

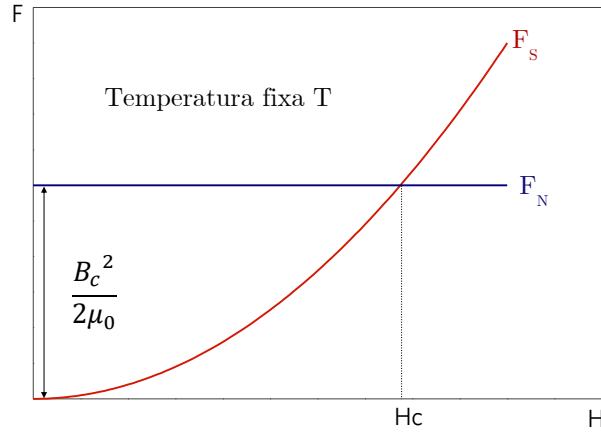


Figura 3.4: Variação da energia livre entre o estado normal e supercondutor em função do campo aplicado. Em  $H_c$  as energias livres são iguais e acima de  $H_c$  a energia livre do supercondutor torna-se maior que a do estado normal.

Uma vez estabelecida a energia livre, é possível obter a diferença de entropia entre o estado normal e supercondutor. De posse da energia livre de Gibbs, podemos calcular a entropia como

$$S_N - S_S = -\frac{\partial}{\partial T}(F_N - F_S), \quad (3.13)$$

e utilizando a equação 3.11, obtém-se

$$S_N - S_S = -\frac{B_c}{2\mu_0} \frac{\partial B_c}{\partial T} \quad (3.14)$$

e como já conhecemos a relação do campo magnético com a temperatura  $B_c(T)$  dada pela equação 3.15

$$B_c(T) = B_c(0) \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^2, \quad (3.15)$$

a diferença de entropia entre o estado normal e supercondutor fica

$$S_N - S_S = \frac{B_c^2(0)}{\mu_0} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) \frac{T}{T_c^2}. \quad (3.16)$$

Perceba que a quantidade  $B_c^2(0)$  é sempre positiva, assim como todo o resto. Pode-se então definir que a diferença de entropia é positiva. Em outras palavras, a entropia do estado normal  $S_N$  é maior do que a entropia do estado supercondutor  $S_S$ , isto significa que o estado supercondutor é mais ordenado que estado normal. Mais tarde, com a teoria BCS, foi possível relacionar a diminuição da entropia do estado supercondutor com a formação dos pares de Cooper, que

representam um comportamento coerente do gás de elétrons devido à interação com fônons da rede [51].

$$S_N - S_S > 0 \quad (3.17)$$

Como  $S_N = S_S$  em  $T = T_c$ , a transição não envolve calor latente. Portanto, nesta situação, a transição é considerada uma transição de fase de segunda ordem.

Em uma temperatura  $T < T_c$ , a transição para o estado normal só ocorre mediante campo crítico  $B_c$ . Como  $S_N > S_S$ , a transição é acompanhada pela absorção de calor latente quando ocorre do estado supercondutor para o normal. A existência de calor latente em uma transição de fase é caracterizada por uma descontinuidade na primeira derivada da energia livre quando  $T = T_c$ , levando a uma transição de fase de primeira ordem. De modo geral, a transição do estado supercondutor para o normal via campo crítico  $B_c$  é uma transição de fase de primeira ordem. Por outro lado, a transição é de segunda ordem quando provocada pela variação da temperatura a campo nulo. A relação entre calor latente  $L$  e entropia é dada por

$$L = T(S_N - S_S) \quad (3.18)$$

e sabemos que  $S_N - S_S$  é dada pela equação 3.14, portanto

$$L = T \left( \frac{B_c}{2\mu_0} \left[ \frac{\partial B_c}{\partial T} \right] \right) \quad (3.19)$$

que é positivo enquanto considerarmos um campo crítico  $B_c$  finito. Em  $T = T_c$  e  $B_c = 0$ , o calor latente  $L$  se torna nulo, demonstrando ser uma transição de fase de segunda ordem. Porém na presença de campo magnético, qualquer transição que ocorre quando  $T < T_c$  é uma transição de fase de primeira ordem.

Uma outra relação termodinâmica importante que pode ser estabelecida é a diferença do calor específico entre o estado normal e supercondutor, dado por

$$c_N - c_S = T \frac{\partial}{\partial T} (S_N - S_S). \quad (3.20)$$

Substituindo a equação 3.14 em 3.20, verificamos que

$$c_N - c_S = -\frac{T}{2\mu_0} \left( B_c \frac{\partial^2 B_c}{\partial T^2} + \left[ \frac{\partial B_c}{\partial T} \right]^2 \right). \quad (3.21)$$

Na temperatura crítica  $T = T_c$  e  $B_c=0$ , o calor específico fica

$$c_N - c_S = -\frac{T}{2\mu_0} \left( \frac{\partial B_c}{\partial T} \right)_{T_c}^2 \quad (3.22)$$

demonstrando a existência de uma descontinuidade em  $T_c$ . O resultado negativo indica que há um aumento do calor específico na transição da fase supercondutora. A relação 3.22 é conhecida como lei de Rutgers e implica que existe um salto descontínuo em  $T = T_c$  no calor específico em função da temperatura [52]. A lei define o tamanho do salto como pode ser visto na figura 3.5.

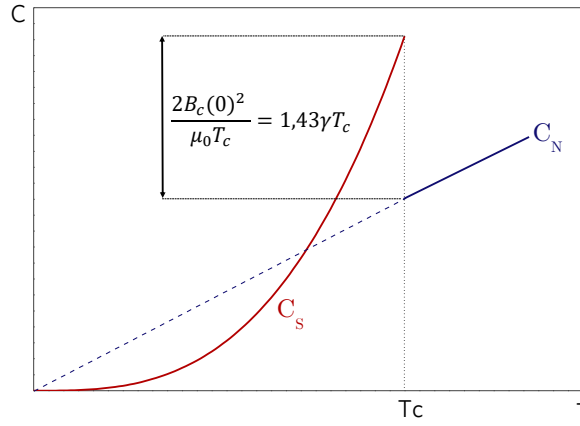


Figura 3.5: Dependência do calor específico de um supercondutor com a temperatura. O calor específico decai linearmente no estado normal e sofre uma descontinuidade em  $T_c$ , no qual passa a decair exponencialmente.

Vale enfatizar que, embora a equação 3.22 contenha o termo dependente do campo crítico  $B_c$ , ela fornece o calor específico a campo nulo. A derivada de  $B_c$  em relação à temperatura  $T$  é uma propriedade do material que não precisa sequer de campo aplicado. Já a equação 3.21 fornece a diferença de calor específico na presença de campo magnético.

Em baixas temperaturas o calor específico de um metal normal segue a relação

$$c_N = \gamma T + \alpha \left( \frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \quad (3.23)$$

no qual o termo linear é atribuído às excitações eletrônicas dos elétrons de condução, e o termo cúbico deve-se à contribuição das vibrações da rede.  $\gamma$  e  $\alpha$  são constantes e  $\Theta_D$  a temperatura de Debye. O coeficiente  $\gamma$  é chamado de coeficiente de Sommerfeld e é proporcional à densidade de estados no nível de Fermi\*, dado por

$$\gamma = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 D(E_F). \quad (3.24)$$

---

\* $\gamma$  é proporcional a  $D(E_F)$  pois apenas elétrons próximos à energia de Fermi participam de excitações térmicas.

Abaixo da temperatura crítica, o comportamento do calor específico é alterado drasticamente e passa a decair aproximadamente por lei de potência de terceira ordem, mostrando que o comportamento da rede passa a ser predominante, como mostra a figura 3.5. Em temperaturas bem abaixo de  $T_c$  a teoria BCS estabelece um comportamento exponencial do calor específico (equação 3.25), implicando na existência de um gap de energia  $\Delta$  da ordem de  $k_B T_c$ .

$$c_s = 9,17\gamma T_c \exp\left(\frac{-1,5T_c}{T}\right). \quad (3.25)$$

Este conceito já havia sido sugerido antes da teoria BCS por Dant and Mendelssohn [53] para a explicação da ausência de efeitos termoelétricos. Tal dependência exponencial, implica uma energia de excitação mínima por partícula de  $\sim 1,5k_B T_c$ . A comparação entre o calor específico dado pela equação 3.22 e o comportamento esperado pela teoria BCS está indicado na figura 3.5, no qual o salto da descontinuidade pode ser calculado substituindo a equação 3.15 em 3.22, levando a

$$c_S - c_N = \frac{T}{2\mu_0} \left(\frac{\partial B_c}{\partial T}\right)_{T_c}^2 = 2 \frac{B_c(0)^2}{\mu_0 T_c} = 1,43\gamma T_c. \quad (3.26)$$

## 3.5 Teoria de London

Em uma tentativa de descrever o fenômeno da supercondutividade, em 1934 F. Lodon e H. London, baseado no modelo dos fluidos, introduzem o conceito de superelétrons, que são aqueles responsáveis pela supercorrente. Estes superelétrons são, de alguma maneira ainda não compreendida, diferentes dos elétrons normais responsáveis pela condução de correntes elétricas nos metais normais como já se conhecia [54, 55]. A teoria obedece as leis de Maxwell da eletrodinâmica e consegue descrever o efeito Meissner.

A condução elétrica para um metal normal é dada pela lei de Ohm

$$\vec{j}(\vec{r}) = \sigma \vec{E}(\vec{r}) \quad (3.27)$$

em que  $\vec{j}(\vec{r})$  é a densidade de corrente,  $\vec{E}(\vec{r})$  o campo elétrico e  $\sigma$  a condutividade, com uma pequena modificação na qual os superelétrons passam a ser responsáveis pela supercondutividade. De uma densidade  $n$  total de elétrons no material, uma parte se comporta como superelétrons  $n_s$ , que não são espalhados por impurezas ou vibrações da rede, portanto, não contribuem com a resistividade. Como não existe efeitos dissipativos, os superelétrons podem ser relacionados com a segunda lei de Newton do movimento quando submetidos a um campo elétrico  $\vec{E}$ , ou seja

$$m' \left( \frac{d\vec{v}_s}{dt} \right) = e' \vec{E}, \quad (3.28)$$

no qual  $m'$  representa a massa do superelétron,  $\vec{v}_s$  sua velocidade e  $e'$  a carga. Desta forma é possível associar uma densidade de corrente aos superelétrons que se movem com velocidade num certo volume.

$$\vec{j}_s = n_s e' \vec{v}_s \quad (3.29)$$

A equação 3.29 pode ser entendida ao se considerar um fio de comprimento  $\vec{l}$  e seção reta  $A$  em que passa uma carga total de  $n_s e'$  em um intervalo de tempo  $t$ . Aplicando a derivada temporal em 3.29 e substituindo em 3.28, temos

$$\frac{d\vec{j}_s}{dt} = \frac{n_s e'^2 \vec{E}}{m'} \quad (3.30)$$

que é a primeira equação de London. Esta equação expressa uma resistividade nula para um supercondutor e caso não haja aplicação de campo elétrico, a densidade de corrente supercondutora se mantém constante. Tomando agora o rotacional nos dois lados da equação 3.30

$$\frac{d(\vec{\nabla} \times \vec{j}_s)}{dt} = \frac{n_s e'^2}{m'} (\vec{\nabla} \times \vec{E}) \quad (3.31)$$

sabendo pela lei de Faraday-Lenz que

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (3.32)$$

e pela lei de Ampère

$$\vec{j}_s = \frac{\vec{\nabla} \times \vec{B}}{\mu_0} \quad (3.33)$$

substituindo 3.32 e 3.33 em 3.31 temos a segunda equação de London

$$\vec{\nabla}^2 \vec{B} - \frac{1}{\lambda_L^2} \vec{B} = 0, \quad (3.34)$$

com  $\lambda_L$  sendo o comprimento de penetração, dado por

$$\lambda_L = \left( \frac{m'}{n_s \mu_0 e'^2} \right)^{1/2}. \quad (3.35)$$

Considerando uma dimensão ao longo de  $x$ , podemos escrever

$$\frac{dB^2}{dx^2} - \frac{1}{\lambda^2}B = 0 \quad (3.36)$$

cuja solução é do tipo

$$B(x) = B_0 e^{-x/\lambda_L} \quad (3.37)$$

A solução 3.37, em concordância com o fenômeno observado experimentalmente, mostra que o campo magnético decai para zero a medida em que penetra no supercondutor como mostra a figura 3.6.

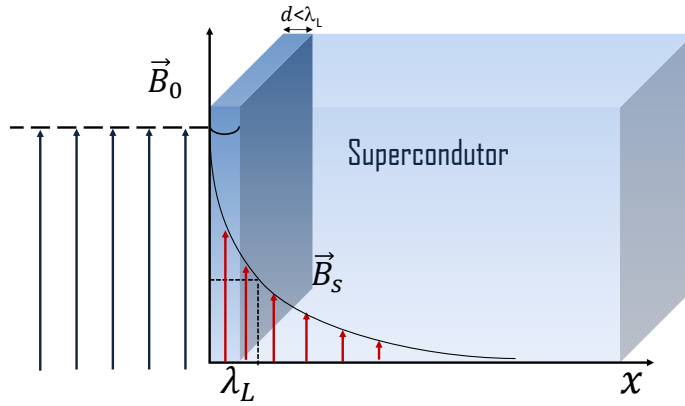


Figura 3.6: Decaimento exponencial do campo magnético ao penetrar no interior de um supercondutor.

Da solução também tiramos uma grandeza importante para definição do tipo de supercondutor, o chamado comprimento de penetração  $\lambda_L$ , que mede a distância que um campo magnético consegue penetrar no interior de um supercondutor. A equação 3.34 explica o efeito Meissner pois não permite que haja uma solução uniforme no espaço, de modo que um campo magnético uniforme não pode existir no interior de um supercondutor.

Perceba que a solução completa de 3.34 leva a outro termo responsável pelo aumento da intensidade do campo magnético a medida que penetra no supercondutor (termo em destaque na equação 3.38).

$$B(x) = B_0 e^{-x/\lambda_L} + B_0 e^{x/\lambda_L} \quad (3.38)$$

Porém esta solução deve ser desconsiderada para filmes com espessuras  $d \gg \lambda_L$ . Caso a espessura do filme seja comparável ou menor que o comprimento de penetração  $\lambda_L$ , o campo

magnético  $\vec{B}_0$  penetrará no filme de forma aproximadamente uniforme e o efeito Meissner não será observado. Nesta situação em que  $d < \lambda_L$ , o campo de blindagem é muito menor que o campo externo [9] e o termo antes desconsiderado passa a ter importância.

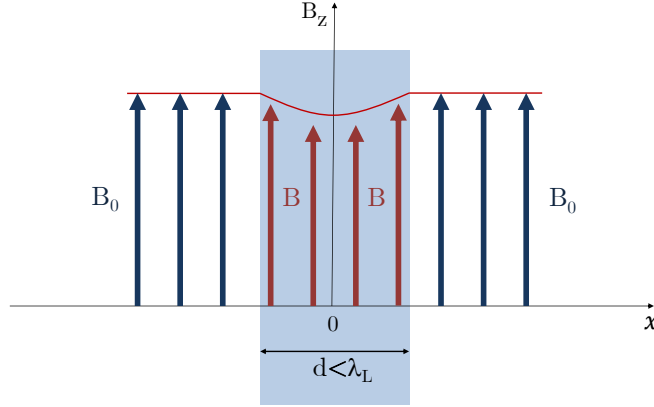


Figura 3.7: Dependência espacial do campo magnético em um filme fino supercondutor de  $d < \lambda_L$ . Nesta situação o campo magnético não possui espaço suficiente para ir a zero e o efeito Meissner não é completo.

É possível, a partir da equação 3.38, deduzir a dependência espacial do campo magnético para um filme fino de espessura  $d < \lambda_L$  (ver figura 3.7). Para esta configuração, o campo magnético é igual ao campo aplicado  $B_0$  nas duas superfícies do filme, ou seja,  $x = d/2$ . Para achar esta solução, o termo exponencial crescente em 3.38 deve ser levado em conta, o que nos leva a

$$B_0 = B \left( \frac{d}{2} \right) = B_1 e^{\frac{-d}{2\lambda_L}} + B_1 e^{\frac{d}{2\lambda_L}}. \quad (3.39)$$

Como o problema é simétrico para  $x$  e  $-x$ , portanto  $B_1 = B_2 = B$ , logo

$$B_0 = B(e^{\frac{-d}{2\lambda_L}} + e^{\frac{d}{2\lambda_L}}) \quad (3.40)$$

com

$$B = \frac{B_0}{2 \cosh[d/2\lambda_L]}. \quad (3.41)$$

Portanto, a solução para o filme supercondutor é

$$B(x) = B_0 \frac{\cosh(x/\lambda_L)}{\cosh(d/\lambda_L)}. \quad (3.42)$$

Este resultado (eq. 3.42), mostra que para um filme de espessura  $d < \lambda_L$ , o campo magnético

varia pouco ao longo de  $d$ , penetrando quase de maneira homogênea na camada supercondutora.

### 3.5.1 Não localidade de Pippard

Uma forma modificada da equação de London foi proposta mais tarde por Pippard baseada em uma versão não local da lei de Ohm [56]. Não localidade passa a ser relevante no problema quando a resposta ao campo magnético só pode ser determinada integrando sobre todo o volume da amostra em um caso tridimensional. A modificação consiste em uma generalização da equação de London relacionando a densidade de corrente  $\vec{J}(r)$  em um ponto  $r$  no supercondutor com o potencial vetor  $\vec{A}$  nas proximidades de  $r'$ , ou seja

$$\vec{J}(\vec{r}) = \frac{-n_s q^2}{m'} \frac{3}{4\pi\xi_0} \int \frac{\vec{R}(\vec{R} \cdot \vec{A}(\vec{r}'))}{R^4} e^{-R/r_0} d^3r', \quad (3.43)$$

em que  $\vec{R} = \vec{r} - \vec{r}'$ . Esta equação (3.43) leva em conta o fato de que a corrente no ponto  $\vec{r}$  depende do campo magnético local  $\vec{A}(\vec{r}')$  sobre o volume de raio  $r_0$  definido como

$$\frac{1}{r_0} = \frac{1}{\xi_0} + \frac{1}{\ell}. \quad (3.44)$$

Em 3.44,  $\ell$  é o livre caminho médio dos elétrons na superfície de Fermi

$$\ell = v_F \tau, \quad (3.45)$$

com  $\tau$  sendo o tempo de espalhamento de Drude e  $v_F$  a velocidade dos elétrons na superfície de Fermi [9]. A descrição de Pippard leva a um comprimento característico  $\xi_0$ , e estabelece que os elétrons responsáveis pela supercondutividade são aqueles no nível de Fermi com energia da ordem de  $k_B T_c$ , e com incerteza no momento

$$\Delta p = \frac{k_B T_c}{v_F} \quad (3.46)$$

na qual a incerteza na posição é

$$\Delta x \geq \frac{\hbar}{\Delta p} \simeq \frac{\hbar v_F}{k_B T_c}, \quad (3.47)$$

definindo o comprimento de coerência como

$$\xi_0 = a \left( \frac{\hbar v_F}{k_B T_c} \right). \quad (3.48)$$

A constante  $a$  foi obtida por Pippard experimentalmente e possui valor de  $a = 0,15$ . A teoria

BCS também chega a uma equação para  $\xi_0$  com o valor da constante sendo  $a = 0,18$  e se relaciona com o gap de energia supercondutor  $\Delta$  através de

$$\xi_0 = a \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta}. \quad (3.49)$$

O comprimento de coerência  $\xi_0$  também representa o tamanho médio entre os dois elétrons ligados do par de Cooper (ver figura 3.8).

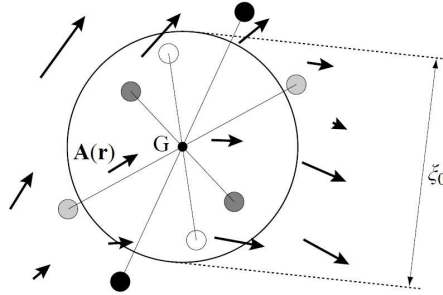


Figura 3.8: Pares de Cooper de tamanho médio  $\xi_0$  em um campo magnético não uniforme  $\vec{A}(\vec{r})$ . Figura extraída de [57].

A equação de Pippard também sugere uma resposta do comprimento de coerência mediante ao grau pureza do supercondutor. Quando impurezas estão presentes, os elétrons são espalhados em um movimento difusivo, diminuindo o tamanho médio do par de Cooper. Então, é possível estabelecer dois regimes em relação à pureza dos supercondutores; aqueles com  $\ell > \xi_0$  estão no regime limpo, já os supercondutores com  $\ell < \xi_0$  encontram-se no regime sujo e a eletrodinâmica torna-se local. Como consequência os supercondutores do regime sujo terão alto valores de  $\lambda_L$ , pequenos  $\xi_0$  como mostra a figura 3.9.

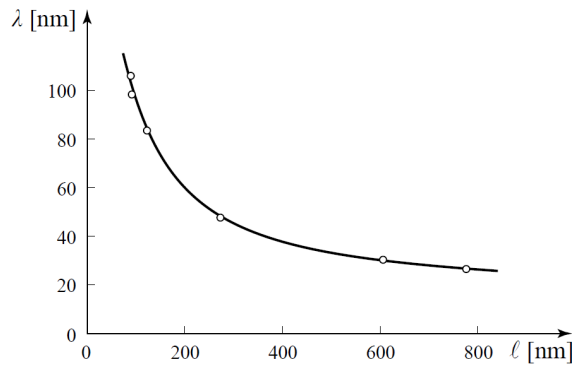


Figura 3.9: Efeitos de impurezas em estanho diluído com índio mostrando a variação no comprimento de penetração em função do livre caminho médio [58].

## 3.6 Teoria de Ginzburg-Landau

Uma nova teoria fenomenológica foi elaborada por L. D. Landau e V. L. Ginzburg em 1950 para explicar as propriedades termodinâmicas da transição do estado normal para o supercondutor [59]. A teoria é baseada no parâmetro de ordem da transição de fase, que sofre uma variação abrupta, indo a zero na transição  $T = T_c$ . Por exemplo, na transição de um material paramagnético para o ferromagnético, a magnetização  $M$  pode ser o parâmetro de ordem

$$M \begin{cases} \neq 0 & \text{em } T < T_c \text{ (ferromagneto)} \\ = 0 & \text{em } T > T_c \text{ (paramagneto)} \end{cases} .$$

Na teoria de Ginzburg Landau, o parâmetro de ordem é a função de onda dos superelétrons  $\psi$ , de forma que

$$\psi \begin{cases} \neq 0 & \text{em } T < T_c \text{ (supercondutor)} \\ = 0 & \text{em } T > T_c \text{ (normal)} \end{cases} .$$

A quantidade  $|\psi(\vec{r})|^2$  pode ser interpretada como a densidade de carga local  $n_s(\vec{r})$  responsável pela supercondutividade, isto é

$$|\psi(\vec{r})|^2 = n_s(\vec{r}). \quad (3.50)$$

Como o parâmetro de ordem evolui no limite da transição de fase, é possível escrever a energia livre como uma série de potências do parâmetro de ordem e então, minimizá-la em relação a qualquer outro parâmetro relevante ao problema como  $\vec{r}$ ,  $\vec{A}$  ou outro.

### 3.6.1 Energia livre na ausência de campo magnético

O principal postulado da teoria de Ginzburg Landau é que se  $\psi$  for pequeno e sofrer pequenas variações no espaço, a energia livre pode ser expandida em séries de potência da forma

$$F_S = F_N + \alpha(T)|\psi(\vec{r})|^2 + \frac{\beta}{2}|\psi(\vec{r})|^4 + \dots \quad (3.51)$$

no qual  $\alpha$  e  $\beta$  são coeficientes fenomenológicos. Como as ordens superiores de  $\psi$  tornam-se antissimétricas em relação à mudança do parâmetro de ordem, a expansão da energia livre pode

ser tomada apenas até a quarta potência. Para temperaturas próximas de  $T_c$ , o coeficiente  $\beta$  deve ser positivo, caso contrário a energia livre não poderia ser minimizada. Para  $T < T_c$ , o coeficiente  $\alpha$  deve ser negativo para que  $F_S$  não seja maior que  $F_N$ . Para  $T > T_c$ ,  $\alpha$  deve ser positivo para que o mínimo da energia livre ocorra em  $\psi(\vec{r}) = 0$  (estado normal).

A minimização da energia livre em relação ao parâmetro de ordem

$$\frac{dF}{d\psi} = 0 \quad (3.52)$$

leva a

$$2\alpha|\psi| + 2\beta|\psi|^3 = 0, \quad (3.53)$$

e sabendo que  $|\psi|^2 = \psi \cdot \psi^*$ , a equação 3.53 fica

$$2\psi(\alpha + \beta\psi^2) = 0, \quad (3.54)$$

que possui duas soluções

$$\begin{cases} \psi = 0 \\ \alpha + \beta\psi^2 = 0 \end{cases} \quad \therefore |\psi|^2 = \frac{-\alpha}{\beta}, \quad (3.55)$$

ou seja

$$F_S - F_N = -\frac{\alpha^2}{2\beta}. \quad (3.56)$$

A solução desejada é tal que  $\alpha(T)$  mude de sinal em  $T = T_c$ , de forma que  $\alpha(T)$  se torne positivo em  $T > T_c$  e o mínimo de  $F_S$  ocorra em  $|\psi|^2 = 0$  representando o estado normal, e  $\alpha$  se torne negativo em  $T < T_c$  e a energia livre seja favorecida. Tomando  $\beta$  como uma constante positiva ( $\beta(T) = \beta = \text{constante}$ ), em geral tem-se

$$\alpha \begin{cases} = 0 & \text{em } T = T_c \\ < 0 & \text{em } T < T_c \\ > 0 & \text{em } T > T_c \end{cases} .$$

Expandindo o coeficiente  $\alpha$  em uma série de Taylor em torno de  $T_c$

$$\alpha(T) = \alpha_0(T - T_c), \quad (3.57)$$

e substituindo em 3.55, tem-se

$$|\psi|^2 = -\frac{\alpha_0(T - T_c)}{\beta}, \quad (3.58)$$

que representa a variação do parâmetro de ordem com a temperatura (ver figura 3.10).

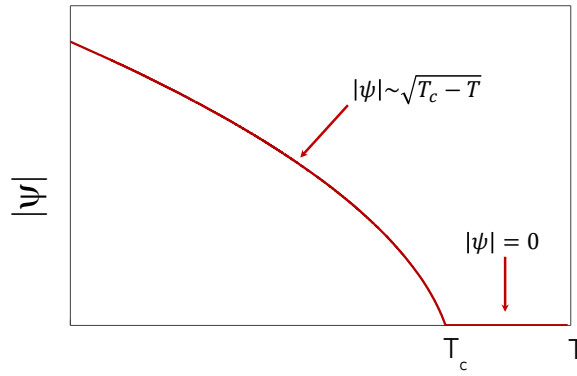


Figura 3.10: Variação do parâmetro de ordem com a temperatura.

A diferença entre as energias livres (eq. 3.56) pode ser reescrita como

$$F_S - F_N = -\frac{\alpha^2(T - T_c)^2}{2\beta}. \quad (3.59)$$

Como ilustrado na figura 3.11, dois casos podem surgir dependendo do valor de  $\alpha$ . Caso  $\alpha$  seja positivo, o mínimo da energia ocorre em  $|\psi|^2 = 0$ , correspondendo ao estado normal. Por outro lado, se  $\alpha < 0$ , o mínimo é dado pela equação 3.58.

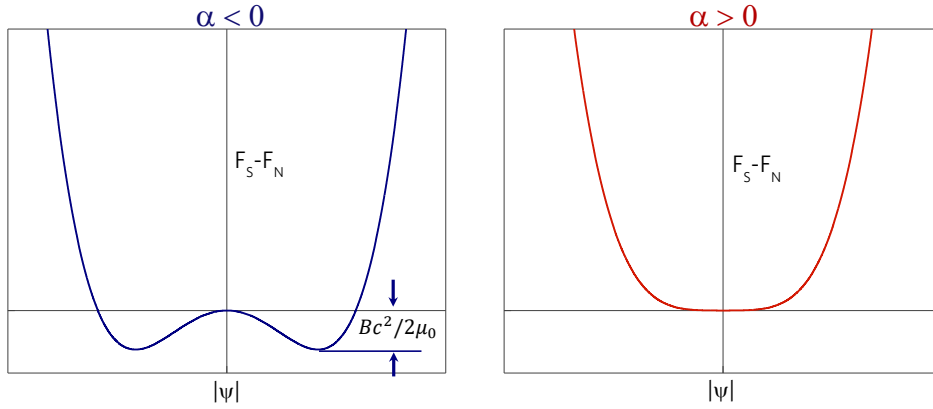


Figura 3.11: Função da energia livre de Ginzburg Landau para  $T > T_c$  que corresponde ao estado normal quando  $\alpha > 0$  e para o estado supercondutor  $T < T_c$  quando  $\alpha < 0$ .

Das relações termodinâmicas (eq. 3.11), a diferença entre a energia livre  $F_S - F_N$  leva ao campo crítico termodinâmico  $B_c$ , logo, os coeficientes  $\alpha$  e  $\beta$  podem ser escritos em função de  $B_c$  através de

$$F_S - F_N = \frac{\alpha^2(T - T_c)^2}{2\beta} = \frac{B_c^2}{2\mu_0}, \quad (3.60)$$

mostrando que o campo crítico termodinâmico possui dependência com a temperatura próximo de  $T_c$ . Considerando que o parâmetro de ordem  $\psi$  não varie com a posição  $\vec{r}$ , o comprimento de penetração de London (eq. 3.35), também pode ser escrito em função dos coeficientes. Tomando a solução  $|\psi|^2 = \frac{-\alpha}{\beta} = n_s$  e substituindo na equação 3.35, o comprimento de penetração  $\lambda_L$  fica

$$\frac{\alpha}{\beta} = \frac{m'}{\mu_0 e'^2 \lambda_L^2}. \quad (3.61)$$

Portanto, a combinação de 3.60 com 3.61 nos permite definir o valor dos coeficientes  $\alpha$  e  $\beta$  como

$$\alpha(T) = \frac{B_c^2 e'^2 \lambda_L^2}{m'} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) \quad (3.62)$$

e

$$\beta = \frac{B_c^2 e'^4 \lambda_L^4 \mu_0}{m'^2} = \text{Constante}, \quad (3.63)$$

de modo que o comprimento de penetração de London também está associado com o campo crítico termodinâmico, e conseqüentemente com a temperatura. Na formulação original da teoria, achava-se que  $e'$  assumiria os valores convencionais. Entretanto, para o melhor ajuste dos dados experimentais, o valor de  $e'$  foi corrigido para  $e' \approx 2e$ . A teoria BCS em seguida

comprovou o valor exato de  $e' = 2e$ , que corresponde à carga do par de Cooper [51].

### 3.6.2 Comprimento de coerência de Ginzburg Landau

Aplicando algumas condições de contorno é possível obter, a partir da teoria de Ginzburg Landau, o comprimento de penetração de London, além do comprimento de coerência  $\xi_{GL}$  já mencionado anteriormente. Considere uma junção entre um material normal não magnético com um supercondutor. Suponha que a interface esteja no plano  $yz$  que separa o metal normal na região  $x < 0$  do supercondutor na região  $x > 0$ . Na região do metal normal, o parâmetro de ordem supercondutor  $\psi(\vec{r})$  deve ser zero.

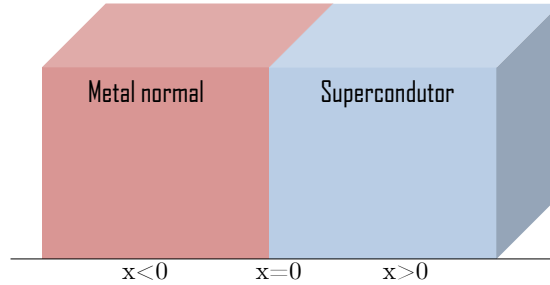


Figura 3.12: Junção entre um material normal não magnético e um supercondutor. Define-se  $x = 0$  a interface no qual os dois materiais encontram-se em contato.

Assumindo que  $\psi(\vec{r})$  seja contínuo, devemos, portanto, resolver a equação não linear de Schrödinger em uma dimensão. A equação da energia livre se torna

$$F_S - F_N = -\frac{\hbar^2}{2m'} \frac{d^2\psi}{dx^2} + \alpha|\psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\psi|^4. \quad (3.64)$$

Neste momento, é razoável introduzir a função de onda normalizada  $f = \psi/\psi_\infty$ , no qual  $\psi_\infty^2 = -\alpha/\beta > 0$ . No caso anterior  $\psi$  representava o parâmetro de ordem dentro do supercondutor ( $\psi_\infty \rightarrow bulk$ ). No caso atual  $\psi = \psi_\infty \cdot f$ , portanto, a medida que  $\psi$  for penetrando no supercondutor, a função será  $f = 1$ . A equação 3.64 minimizada e com as devidas modificações se torna

$$\frac{\hbar^2}{2m'|\alpha|} \frac{d^2f}{dx^2} + f - f^3 = 0, \quad (3.65)$$

no qual o comprimento de coerência é definido como

$$\xi^2(T) = \frac{\hbar^2}{2m'|\alpha|} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right), \quad (3.66)$$

que fornece a extensão da função de onda do par de Cooper. Este comprimento característico é a medida da distância no qual o parâmetro de ordem responde a uma perturbação, que neste caso, é a própria presença da interface. Note que este comprimento de coerência é diferente do mencionado por Pippard, pois, uma vez que  $\alpha = \alpha_0(T - T_c)$ ,  $\xi(T)$  diverge em  $T_c$ .

Na interface, vamos dizer que  $f(x) = 1 + g(x)$ , em que  $g$  é pequeno comparado com  $f$  ( $g(x) \ll 1$ ) e representa uma medida do parâmetro de ordem. Multiplicando os dois lados da equação 3.66 por  $2m/\hbar^2$ , em termos de  $g$ , obtemos a forma linearizada dada por

$$\frac{d^2g}{dx^2} - \frac{2}{\xi^2}g = 0, \quad (3.67)$$

cuja solução é

$$g(x) \approx e^{\pm x\sqrt{2}/\xi} \quad (3.68)$$

que mostra que uma pequena perturbação no parâmetro de ordem vinda de  $\psi_\infty$  decairá em um comprimento característico  $\xi(T)$ . É possível obter a relação do comprimento de coerência de Ginzburg-Landau com o campo crítico termodinâmico substituindo o valor de  $\alpha$  da equação 3.62 em 3.68, ou seja

$$\xi(T) = \frac{\phi_0}{2\pi\sqrt{2}B_c\lambda_L}, \quad (3.69)$$

no qual  $\phi_0 = h/q$  é o fluxo magnético quântico e  $\lambda_L$  o comprimento de penetração de London. A solução da equação 3.65 para  $x > 0$  em termos de  $\psi$  é

$$\psi = \left(\frac{\alpha}{\beta}\right)^{1/2} \operatorname{tgh}\left(\frac{x}{\sqrt{2}\xi(T)}\right). \quad (3.70)$$

Como mostra a figura 3.10, o parâmetro de ordem primeiramente cresce de zero, e então, se aproxima do valor limite ( $\psi_\infty$ ) no interior do supercondutor.

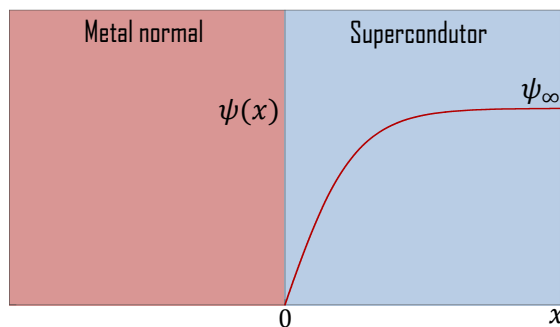


Figura 3.13: Variação do parâmetro de ordem de acordo com a equação 3.70 na interface MN/SC.

Existe uma relação de competição energética entre  $\lambda_L$  e  $\xi$ . O comprimento de penetração de Ginzburg Landau está relacionado com a diminuição da energia livre, uma vez que o parâmetro de ordem evolui. Já o comprimento de penetração de London  $\lambda_L$ , que fornece a profundidade do campo magnético no supercondutor, está relacionado com o aumento da energia livre, uma vez há campo magnético aplicado. Com isto, torna-se possível introduzir um novo parâmetro  $\kappa$  específico para cada material e independente da temperatura. Tomando a razão entre o comprimento de penetração e o comprimento de coerência, define-se parâmetro de Ginzburg-Landau  $\kappa$ , que também é utilizado para classificar os tipos de supercondutores.

$$\kappa = \frac{\lambda_L(T)}{\xi(T)}. \quad (3.71)$$

Abrikosov em [48] propôs a classificação de dois tipos de supercondutores. Aqueles com valor de  $\kappa < 1/\sqrt{2}$  são categorizados supercondutores tipo I. Neste tipo de supercondutor, o efeito Meissner é completo até que se atinja o valor do campo crítico  $B_c$ . Os supercondutores tipo II são aqueles com  $\kappa > 1/\sqrt{2}$  e que apresentam dois campos críticos,  $B_{c1}$  e o chamado campo crítico superior  $B_{c2}$ . Este tipo de supercondutor pode assumir um estado misto entre  $B_{c1}$  e  $B_{c2}$  no qual o fluxo magnético penetra parcialmente no supercondutor criando uma rede de vórtices de supercorrentes através do volume do filme [60]. A figura 3.14 mostra o diagrama de fase para supercondutores tipo I e tipo II em relação ao campo crítico.

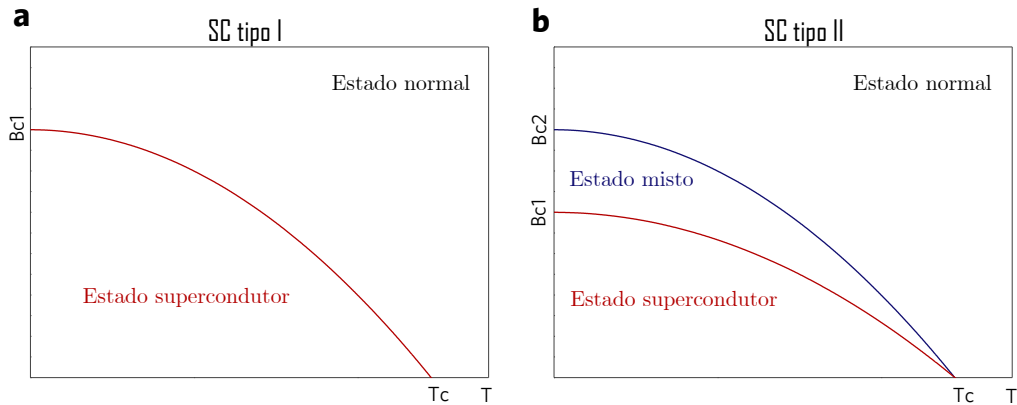


Figura 3.14: Diagrama de fase  $B_c(T)$  para (a) supercondutores tipo I e (b) supercondutores tipo II.

A teoria de Ginzburg Landau é aplicável não apenas aos supercondutores limpos, mas também pode ser utilizada em regimes sujos (quando há presença de impurezas). Para esta situação, os parâmetros  $\alpha$  e  $\beta$  são expressos em termos do caminho livre médio  $\ell = v_F \tau$  entre as impurezas, que pode ser obtido a partir de medidas de condutividade Hall utilizando o modelo de Drude dos elétrons livres [61]. No regime sujo, o comprimento de coerência supercondutor é

determinado pelo movimento difusivo dos pares, de forma que  $\xi = \sqrt{\xi_0 \ell}$  [62].

### 3.6.3 Energia livre na presença de campo magnético

O poder da teoria de Ginzburg Landau para supercondutores só se torna aparente quando incluímos o efeito de um campo magnético. Esta abordagem está em concordância com os efeitos fenomenológicos de Meissner e London. Em um sistema no qual o campo magnético não é nulo, o operador momento deve ser inserido na equação da energia livre devidamente modificado

$$\frac{\hbar}{i}\nabla \longrightarrow \frac{\hbar}{i}\nabla - e'\vec{A} \quad (3.72)$$

no qual  $\vec{A}$  é o potencial vetor ( $\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A}$ ). A equação da energia toma a forma

$$F_S = F_N + \alpha(T)|\psi(\vec{r})|^2 + \frac{\beta}{2}|\psi(\vec{r})|^4 + \frac{\hbar^2}{2m'} \left| \left( \frac{\hbar}{i}\nabla - e'\vec{A} \right) \psi(\vec{r}) \right|^2 + \frac{B_a^2}{2\mu_0} = 0 \quad (3.73)$$

Como o campo magnético depende da posição  $\vec{A}(\vec{r})$ , então a energia livre também é função de  $F_S\{\psi(\vec{r}), \psi^*(\vec{r}), \vec{A}(\vec{r})\}$ . A minimização da energia com respeito ao parâmetro  $\psi^*(\vec{r})$  leva à primeira equação de Ginzburg Landau

$$\alpha(T)|\psi(\vec{r})| + \beta|\psi(\vec{r})|^2\psi(\vec{r}) + \frac{\hbar^2}{2m'} \left( \frac{\hbar}{i}\nabla - e'\vec{A}(\vec{r}) \right)^2 \psi(\vec{r}) = 0 \quad (3.74)$$

que descreve a variação do parâmetro de ordem no interior de uma amostra supercondutora, e é semelhante à equação de Schrödinger para uma partícula de massa  $m'$ , carga  $e$  em um campo magnético e energia  $\alpha$ . O termo  $\frac{\hbar}{i}\nabla + e'\vec{A}(\vec{r})$  fornece a energia associada com a variação espacial do parâmetro de ordem na presença de campo magnético, e pode ser interpretado como a energia cinética dos pares de Cooper.

A segunda equação de Ginzburg Landau pode ser obtida tomando a minimização da energia com relação ao potencial vetor  $\vec{A}(\vec{r})$ , e aplicando a relação de Maxwell  $\vec{\nabla} \times \vec{B}(\vec{r}) = \mu_0 \vec{J}(\vec{r})$ , ou seja,

$$\vec{J}(\vec{r}) = -\frac{ie'\hbar}{2m'}(\psi^*(\vec{r})\nabla\psi(\vec{r}) - \psi(\vec{r})\nabla\psi^*(\vec{r})) - \frac{e'^2}{2m'}|\psi(\vec{r})|^2\vec{A}(\vec{r}). \quad (3.75)$$

A equação 3.75 representa a densidade de corrente para um sistema de partículas com carga  $e$ , massa  $m'$  na presença de campo magnético. Esta relação representa uma resposta eletrodinâmica local, uma vez que a densidade  $\vec{J}(\vec{r})$  depende de  $\psi(\vec{r})$  e  $\vec{A}(\vec{r})$  na posição  $\vec{r}$ .

### 3.7 Campo crítico superior

Quando um supercondutor tipo II é submetido a valores de campo magnético acima de  $B_{c1}$ , a densidade de linhas de fluxo dentro do material aumenta, até que eventualmente, a transição para o estado normal ocorre. O campo magnético no qual este evento acontece é chamado de campo crítico superior ( $B_{c2}$ ). Na região um pouco abaixo de  $B_{c2}$ , o parâmetro de ordem supercondutor deve ser pequeno, portanto o modelo de Ginzburg Landau fornece uma boa descrição.

O operador momento na presença de campo magnético pode ser escrito como

$$\hat{p} = -i\hbar\nabla - q\vec{A}, \quad (3.76)$$

logo, a energia cinética  $\hat{H} = \hat{p}^2/2m$ , fica

$$\hat{H} = \frac{(-i\hbar\nabla - q\vec{A})^2}{2m}. \quad (3.77)$$

Negligenciando os termos maiores, a minimização da energia em relação a  $\psi$  leva a equação linearizada de Ginzburg Landau

$$\frac{(-i\hbar\nabla - q\vec{A})^2}{2m}\psi + \alpha\psi = 0. \quad (3.78)$$

Se tomarmos  $\vec{B}$  ao longo do eixo z de modo que  $B = B_{\hat{e}_z}$ , haverá um campo uniforme ao longo do eixo x, então  $\vec{A} = (0, B_x, 0)$  e a equação 3.78 pode ser reescrita como

$$-\frac{\hbar^2\nabla^2}{2m}\psi + \frac{i\hbar q(\vec{A}\nabla)}{m}\psi + \frac{q^2\vec{A}^2}{2m}\psi + \alpha\psi = 0. \quad (3.79)$$

Expandindo  $\nabla \cdot \vec{A}$ , e sabendo que o potencial vetor está apenas em função de  $x$ , de modo que  $\vec{A} \rightarrow B_x$ , a equação 3.79 fica

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\left(\frac{\partial^2\psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2\psi}{\partial y^2} + \frac{\partial^2\psi}{\partial z^2}\right) + \frac{i\hbar q B_x}{m}\frac{\partial\psi}{\partial y} + \frac{q^2 B_x^2 x^2}{2m}\psi + \alpha\psi = 0. \quad (3.80)$$

Separando as variáveis em 3.80, escrevendo a função de onda como uma combinação de ondas planas nas direções  $y$  e  $z$

$$\psi(\vec{r}) = e^{i(k_y y + k_z z)} f(x), \quad (3.81)$$

e reescrevendo o termo  $-\frac{\hbar^2}{2m}$  como  $-\frac{\hbar^2 k_z^2}{2m}$ , a equação 3.80 fica

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2\psi^*}{dx^2} + \frac{1}{2}m\omega^2(x-x_0)^2\psi^* = \left(\alpha - \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m}\right)\psi^*, \quad (3.82)$$

no qual  $x_0 = \hbar k_y/qB$ . A relação 3.82 é igual a equação de Schrödinger para um oscilador harmônico em uma dimensão com partícula de energia  $\alpha$ , carga  $q$  e massa  $m$  em um campo magnético  $\vec{B}$  associado ao potencial vetor  $\vec{A}$ . Este é um problema bem estabelecido na mecânica quântica, com autovalor dado por

$$E_n = \left(n + \frac{1}{2}\right)\omega\hbar \quad (3.83)$$

em que  $\omega = qB/m$  é a frequência do movimento ciclotron da partícula. Sabendo que  $B_{c2}$  acontece para o menor autovalor (estado fundamental), ou seja,  $n = 0$  e  $k_z = 0$ , pela equação 3.82, a energia dada por

$$E = \alpha - \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m}, \quad (3.84)$$

combinada com a equação 3.83, fornece

$$B_{c2} = \frac{2\alpha m}{e\hbar} \quad (3.85)$$

em que o comprimento de coerência de Ginzburg Landau é  $\xi_{GL}^2 = 2\alpha m/\hbar$  e  $\phi_0$  o fluxo magnético quântico, que representa a quantização do fluxo magnético que penetra em um supercondutor tipo II entre  $B_{c1}$  e  $B_{c2}$ , vale  $\phi_0 = h/2e = 2,067 \times 10^{-15} \text{Wb}$ . Portanto, a equação para o campo crítico superior pode ser definida como

$$B_{c2} = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{GL}^2} = \kappa\sqrt{2}B_c \quad (3.86)$$

em que  $\kappa$  é o parâmetro de Ginzburg Landau. Da equação 3.86, é possível deduzir que supercondutores com  $\kappa > 1/\sqrt{2}$  terão  $B_{c2} > B_c$ , e a transição de fase será de segunda ordem com o parâmetro de ordem crescendo continuamente de zero em um campo logo abaixo de  $B_{c2}$ , o que descreve um supercondutor tipo II. Caso  $\kappa < 1/\sqrt{2}$ , o campo magnético superior será  $B_{c2} < B_c$ , e a transição de fase será de primeira ordem com o parâmetro de ordem saltando descontinuamente para um valor finito. A relação geral entre  $\psi$ ,  $\xi$  e  $\lambda_L$  para supercondutores tipo I e tipo II pode ser vista na figura 3.15.

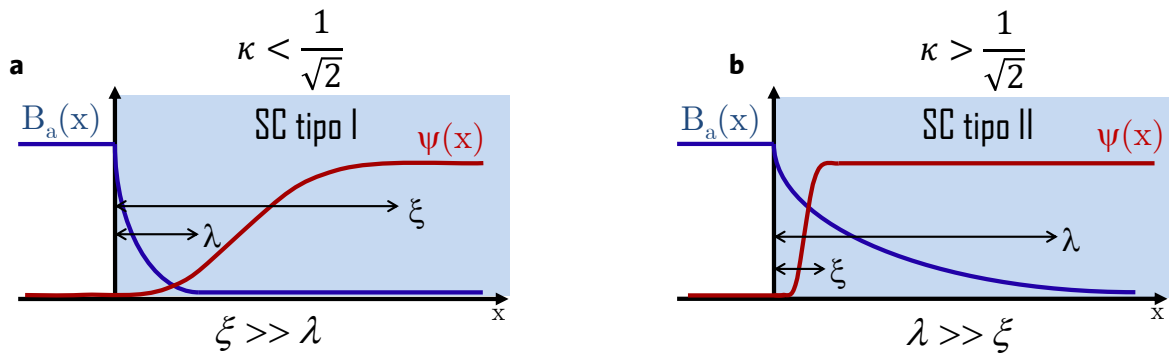


Figura 3.15: (a) Supercondutor tipo I no qual o parâmetro de Ginzburg Landau é menor que 0,70 e (b) Supercondutor tipo II que possuem  $\xi < \lambda_L$ .

### 3.8 Teoria BCS

Sabe-se que em um metal normal, os elétrons livres (mar de Fermi) são espalhados por impurezas e vibrações térmicas, ou seja, existe um tipo de interação elétrons-rede que afeta o comportamento eletrônico do material. Pela conservação tanto do momento, quanto da energia, um modo de vibração da rede deve ser excitado quando um elétron é espalhado, resultando na emissão de um fônon [63]. Em 1950, Fröhlich mostrou que a interação elétron-fônon poderia afetar o sistema de modo a atrair outro elétron ocasionando uma ligação entre eles [64]. Este tipo de interação vai contra o que se imaginava, uma vez que a interação entre dois elétrons deveria ser apenas repulsiva devido à força coulombiana. Considere dois elétrons que se propagam por uma rede cristalina constituída por íons positivos. O movimento dos elétrons provoca uma pequena distorção da rede, que por sua vez, são deslocados do seu ponto de equilíbrio pela ação da força coulombiana como ilustra a figura 3.16.

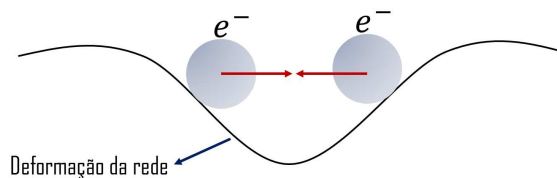


Figura 3.16: Atração entre dois elétrons causada pela deformação da rede.

A densidade de cargas positivas próxima aos elétrons aumenta e ao relaxar de volta para a posição inicial, a rede emite um fônon. Desta maneira, elétrons são atraídos para a região deformada de

forma que a atração causada pela interação elétron-fônon é superada pela repulsão coulombiana.

Em 1957, Bardem, Cooper e Schrieffer (BCS), baseado nos trabalhos de Fröhlich, formularam a primeira teoria microscópica da supercondutividade [51]. Cooper mostrou matematicamente que dois elétrons fora da superfície de Fermi podem se acoplar formando um par estável com energia menor que  $E_F$ , não importando quão fraca seja a atração entre eles. O motivo de Cooper tomar dois elétrons fora da superfície de Fermi é que esses se relacionariam com os demais apenas através do princípio de exclusão de Pauli. Este acoplamento entre dois elétrons mediada por um fônon é chamado de Par de Cooper e só pode acontecer próximo à superfície de Fermi na faixa de energia  $\hbar\omega_D$ , em que  $\omega_D$  é a frequência de Debye do fônon [50]. Desta forma, espera-se que o mais baixo estado de energia seja aquele com momento total nulo, isto é, spins que constituem o par no estado singleto e com momento iguais, mas com sentidos opostos ( $\vec{k}, -\vec{k}$ ). Isto sugere a construção de uma função de onda para o par como

$$\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \sum_{\vec{k}} g_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} \quad (3.87)$$

em que  $g_{\vec{k}}$  é a combinação linear das funções de onda do elétron  $\varphi_{\vec{k}} = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$ , que deve ser antissimétrica em relação aos estados de spin uma vez que obedecem ao princípio de exclusão de Pauli. Tomando o potencial atrativo entre os elétrons  $V_{\vec{k}\vec{k}'} = -V$  para o intervalo  $E_F - \hbar\omega_D < E_{\vec{k}}, E_{\vec{k}'} < E_F + \hbar\omega_D$  e aplicando 3.87 na equação de Schrödinger independente do tempo  $H\psi = E\psi$  em uma aproximação onde  $D(E_F) \ll 1$ , a energia de ligação do par  $\Delta = -(E - 2E_F(0))$  pode ser escrita como

$$\Delta = 2\hbar\omega_D \exp\left(\frac{-2}{D(E_F)V}\right), \quad (3.88)$$

de modo que pode existir um estado ligado abaixo da superfície de Fermi mesmo quando  $|\vec{k}| > |k_F|$ . A formação do par acontecerá sempre que o potencial for atrativo, não importando a força de atração entre os elétrons. Os pares de Cooper, de spin inteiro, se comportam como Bósons, isto significa que o movimento dos elétrons que constituem o par não pode acontecer de modo independente. O tamanho do par é geralmente maior do que as distâncias interatômicas, de modo que cada elétron na superfície de Fermi pode ser pensado como parte de qualquer outro par de Cooper então preso ao estado ligado com outro elétron, o que significa que em os pares se quebram e se reformam continuamente.

Em um sistema de muitos corpos, a função de onda que descreve o estado fundamental de vários pares de Cooper é dada por

$$|\psi_{BCS}\rangle = \prod_k (u_k + v_k c_{k\uparrow}^\dagger c_{-k\downarrow}^\dagger) |\phi_0\rangle, \quad (3.89)$$

em que  $|\phi_0\rangle$  é o estado de vácuo,  $c_{k\uparrow}^\dagger$  e  $c_{k\uparrow}$  representam o operador de criação e aniquilação de um elétron com momento  $\vec{k}$  e spin  $\uparrow$ . A mesma definição se aplica para partícula de momento  $-\vec{k}$  e spin  $\downarrow$ .  $u_k$  e  $v_k$  são amplitudes de probabilidade para os quais vale  $|u_k|^2 + |v_k|^2 = 1$ . Em intervalos próximo à energia de Fermi, o estado do par está simultaneamente desocupado com probabilidade  $|u_k|^2$  e ocupado com probabilidade  $|v_k|^2$ . Os parâmetros variacionais\*  $u_k$  e  $v_k$  podem ser encontrados minimizando o valor esperado da energia total do sistema

$$E = \langle \psi_{BCS} | \mathcal{H} | \psi_{BCS} \rangle, \quad (3.90)$$

com a hamiltoniana dada por

$$\mathcal{H} = \sum_{\vec{k}, \sigma} \epsilon_{\vec{k}} n_{\vec{k}, \sigma} + \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} V_{\vec{k}, \vec{k}'} c_{k\uparrow}^\dagger c_{-k\downarrow}^\dagger c_{-k'\downarrow} c_{k'\uparrow}. \quad (3.91)$$

O termo  $n_{\vec{k}, \sigma}$  representa o operador que conta o número de partículas em um estado específico  $\sigma = \uparrow, \downarrow$ ,  $\epsilon_{\vec{k}}$  é a energia do elétron medida a partir de  $E_F$  e  $V_{\vec{k}, \vec{k}'}$  a interação atrativa entre os elétrons. A minimização da energia leva a

$$|u_{\vec{k}}|^2 = \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{\epsilon_{\vec{k}}}{E_{\vec{k}}} \right) \quad (3.92)$$

e

$$|v_{\vec{k}}|^2 = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{\epsilon_{\vec{k}}}{E_{\vec{k}}} \right), \quad (3.93)$$

com  $E_{\vec{k}} = \sqrt{\epsilon_{\vec{k}}^2 + |\Delta_{\vec{k}}|^2}$  podendo ser interpretado como a energia de excitação que deve ser fornecida para gerar uma quasi-partícula com o momento  $\vec{k}$ . Nesta relação,  $\Delta_{\vec{k}}$  representa o gap de energia supercondutora no zero absoluto, que pode ser obtida resolvendo a equação auto consistente [50, 65], levando a

$$\Delta_{\vec{k}} = - \sum_{\vec{k}'} \frac{\Delta_{\vec{k}'}}{2\sqrt{\epsilon_{\vec{k}}^2 + |\Delta_{\vec{k}'}|^2}} V. \quad (3.94)$$

No limite do acoplamento fraco ( $D(E_F)V \ll 1$ ) da teoria BCS,  $\Delta_{\vec{k}}$  tem simetria de onda s, ou seja, é independente do momento, isto significa que  $\Delta_{\vec{k}} = \Delta$ . É possível também mostrar, pela

---

\*Essa construção vale apenas para  $T=0$ .

teoria BCS [65] que o gap possui dependência com a temperatura, dada por

$$\Delta(T) = 1,74\Delta(0)\sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}, \quad (3.95)$$

com  $\Delta(0) = 1,76k_B T_c$  e  $k_B$  a constante de Boltzmann. A figura mostra o comportamento experimental do gap em função da temperatura para alguns supercondutores e a correspondente previsão da teoria BCS.

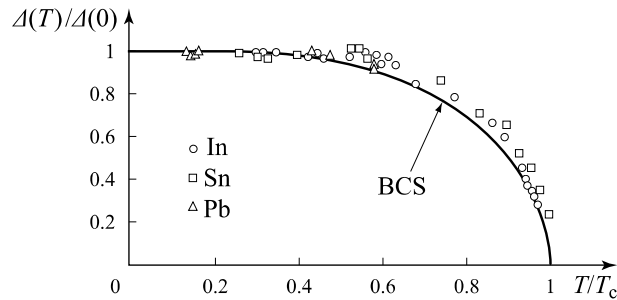


Figura 3.17: Dependência do gap supercondutor em função da temperatura reduzida para In, Sn e Pb. A curva contínua representa a previsão teoria BCS. Figura extraída de [57].

Em uma temperatura abaixo de  $T_c$ , um gap de largura  $2\Delta$  se abre no nível de Fermi separando o estado fundamental dos estados excitados como mostra a figura 3.18. A energia necessária para romper o par é o gap da teoria BCS, que é máxima a 0 K, uma vez que não há vibrações térmicas.

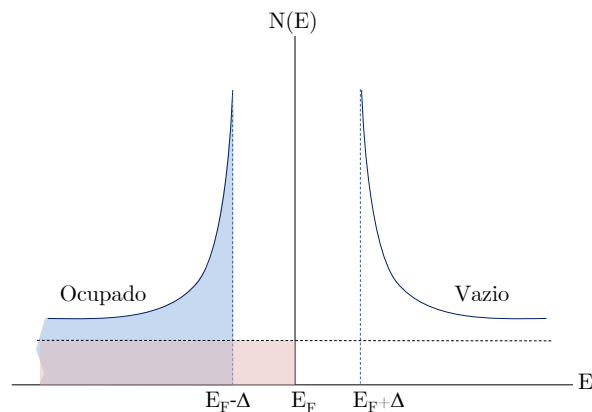


Figura 3.18: Densidade de estados para um supercondutor (azul) e um metal normal (vermelho) próximo ao nível de Fermi. A linha horizontal tracejada corresponde ao estado de condução do metal normal e a linha contínua o estado supercondutor no zero absoluto.

Em outras palavras, no estado supercondutor os pares possuem nível de energia menor que os elétrons normais, logo, formar pares é mais econômico do ponto de vista energético.

Para destruir a supercondutividade é necessário que o par absorva energia de forma a superar o gap de energia, quebrando assim a ligação entre eles. Em baixas temperaturas a ocorrência deste processo é improvável, mesmo que haja aplicação de campo elétrico, desta forma, os pares podem se mover sem serem espalhados, ou seja, com resistividade nula.

A teoria BCS também chega em uma equação para o comprimento de coerência, que representa o tamanho do par de Cooper, dada por [51],

$$\xi_0 = \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta(0)}, \quad (3.96)$$

com  $v_F$  sendo a velocidade de Fermi.

### 3.9 Interação MN/SC e FM/SC

Mesmo após um século da descoberta da supercondutividade por Kammerlingh Onnes [45], o interesse sobre este fenômeno está longe de terminar. Um dos maiores atrativos da última década está na interação interfacial de boa qualidade entre supercondutores e metais normais (MN/SC), ferromagnetos (FM/SC) e ferromagnetos isolantes (FI/SC). Ao combinar materiais, até então antagonistas, uma série de novos fenômenos ocorrem, tais como SC/FM/SC  $\pi$ -fase *Josephson effect* [66], o convencional estado singleto e o não-convencional estado tripleto de spins em válvulas de spins supercondutoras [67]. A interação entre um supercondutor e um metal normal veem sido estudada desde 1964, quando de Gennes [68] noticiou em seus trabalhos que não só o supercondutor muda as propriedades no metal normal, mas também o metal normal altera fortemente as propriedades do supercondutor. Próximo à interface SC/MN, a supercondutividade é suprimida ao longo do comprimento de coerência  $\xi_{SC}$ , de modo que o parâmetro de ordem é reduzido próximo da interface quando comparado com o *bulk*. Por outro lado, os pares de Cooper penetram no MN em uma distância além do comprimento de coerência  $\xi_{MN}$ , podendo ser até maior que  $\xi_{SC}$  quando em baixas temperaturas.

Quando um material supercondutor é colocado em contato com outro material de forma que se obtenha uma boa interface, o tunelamento de elétrons através da interface resulta no efeito de proximidade [68, 69], ou seja, pares de Cooper penetram no metal. Da mesma forma, pode ocorrer de elétrons do metal penetrarem no supercondutor, este efeito por muitas vezes é chamado de efeito de proximidade inverso. Este fenômeno tem grande influência sobre a temperatura de transição do material supercondutor, que pode ser reduzida pela presença de elétrons "normais", assim como pares de Cooper podem induzir supercorrentes no metal. O efeito de proximidade é possível devido ao fato dos pares conseguirem manter-se correlacionados

através de distâncias macroscópicas mesmo após penetrarem em outros materiais. Em um material homogêneo, no regime limpo, o comprimento de coerência térmico do par é dado por

$$\xi = \frac{\hbar v_F}{2\pi k_B T}, \quad (3.97)$$

que fornece a distância que uma quasi-partícula com velocidade de Fermi  $v_F$  viaja por um tempo  $\hbar/2\pi k_B T$  antes que a decoerência térmica descorrelacione os pares e destrua a supercondutividade.

A função de onda supercondutora decai ao penetrar no metal após percorrer uma distância  $\xi$ , na qual o elétron perde a informação de fase e os dois elétrons do par se tornam descorrelacionados (ver figura 3.19).

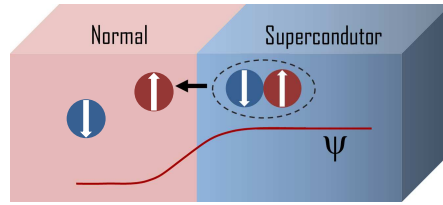


Figura 3.19: Decaimento da função de onda ao penetrar no metal e a aniquilação do par de Cooper.

Para supercondutores no regime sujo, é necessário estabelecer o coeficiente de difusão para calcular o comprimento de coerência. Em um movimento balístico, considerando interfaces suaves, a profundidade de penetração do par de Cooper depende do ângulo de impacto. Desta forma, a velocidade de Fermi deve ser substituída pela componente  $v_{F,x}$  perpendicular à interface. Na presença de impurezas, o espalhamento diminui a profundidade de penetração dos pares no metal. Se o livre caminho médio é  $\ell$ , e o movimento é difusivo, então a quasi-partícula viaja numa média de dois espalhamentos eventuais num tempo

$$\tau = \frac{\ell}{v_F}. \quad (3.98)$$

Para um caminho aleatório, a variância  $\sigma_x^2$  para a componente  $x$  é dada por

$$\sigma_x^2 = \frac{t\ell^2}{3} = \frac{tv_F\ell}{3}, \quad (3.99)$$

no qual  $t$  é o tempo decorrido. A coerência é totalmente perdida quando o caminho total percorrido durante o percurso aleatório é igual a  $\xi$ , então,

$$v_F t = \xi. \quad (3.100)$$

Se definirmos o comprimento de penetração difusivo como

$$\xi_D^2 = \sigma_x^2 \quad (3.101)$$

consequentemente, o comprimento de coerência difusivo fica

$$\xi_D = \sqrt{\frac{\xi \ell}{3}} \quad (3.102)$$

ou como é geralmente escrita

$$\xi_D = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}} \quad (3.103)$$

com a constante de difusão

$$D = \frac{v_F \ell}{3} \quad (3.104)$$

Nos materiais ferromagnéticos, a propagação da função de onda é qualitativamente diferente. Na maioria dos supercondutores, a função de onda dos pares de Cooper se encontram no estado singleto, ou seja, os elétrons dos pares possuem spins opostos, já os ferromagnetos procuram alinhar seus spins de forma paralela devido à tentativa de minimizar a energia de troca. Se o campo de troca do ferromagneto for suficientemente forte, os spins dos elétrons do par se alinharão com o campo e a supercondutividade será desfavorecida. A introdução de materiais magnéticos nos sistema quebram a simetria de reversão temporal e destroem os pares de Copper. O efeito Zeeman entre os spins também deve ser levando em consideração, pois leva a uma divisão entre as bandas eletrônicas, o que provoca uma destruição dos pares e consequentemente uma supressão do estado supercondutor [70].

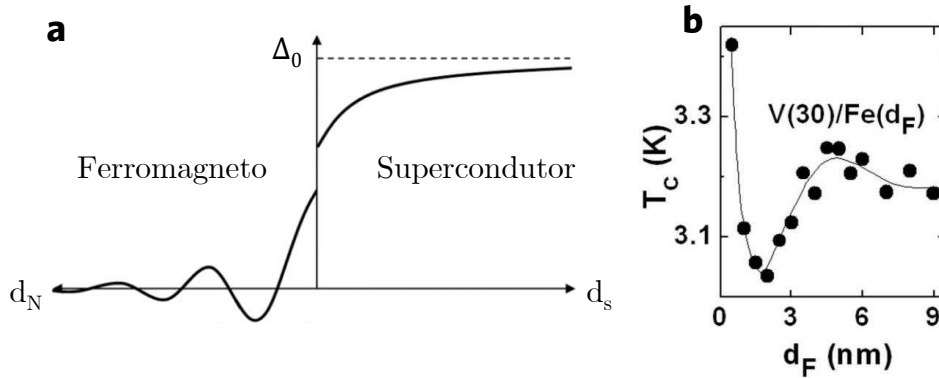


Figura 3.20: (a) Decaimento oscilatório da função de onda ao penetrar no material ferromagnético devido ao grande campo de troca interno. Figura adaptada de [71]. (b) Observação experimental da variação oscilatória da temperatura crítica da bicamada de V(30nm)/Fe( $d_F$ ) em função da espessura da camada de Fe [5].

A figura 3.20(a) ilustra a propagação da função de onda de um material SC em um FM. Ao invés de ocorrer um decaimento exponencial como nos sistemas SC/MN, o parâmetro de ordem do supercondutor decai em um comportamento oscilatório, que pode ser entendido ao considerarmos dois elétrons de spins opostos dos pares de Cooper sentindo um campo de troca  $h$ . O elétron que possui o spin alinhado com o campo tem sua energia cinética reduzida por um valor  $\Delta E$ , enquanto elétron de spin oposto recebe um acréscimo de  $\Delta E$  na sua energia cinética. Como consequência, os elétrons passam a se propagar com diferentes vetores de onda  $\kappa$  e os pares de Cooper adquirem centro de massa com momento  $2q = 2\hbar\Delta p = 2h/v_F$ , que implica na modulação do parâmetro de ordem com período  $\pi v_F/h$ .

Quando a camada ferromagnética é da mesma ordem de grandeza ou maior que o período oscilante do par, o comportamento oscilatório da função de onda do par cria uma dependência oscilatória com a estrutura fazendo com que a temperatura crítica do supercondutor oscile a medida em que a espessura aumenta [72, 73, 74] como mostra a figura 3.20 (b) .

### 3.10 Campo crítico superior no limite sujo

O regime sujo é caracterizado por possuir o caminho livre médio menor  $\ell$  que o comprimento de coerência  $\xi_0$ . Consequentemente, é possível estabelecer uma relação entre a resistividade  $\rho$  do material em função do grau de desordem atômico. A medida em que o grau de desordem aumenta, o livre caminho médio dos elétrons de condução diminui, resultando em um aumento da resistividade que pode ser entendido ao considerar que a velocidade média

dos elétrons diminui devido ao alto número de espalhamentos. O campo crítico superior  $B_{c2}$  também é influenciado diretamente pelo livre caminho médio [75]. A relação 3.105, conhecida como fórmula de Gor’Kov-Goodman [76, 77, 78], mostra o parâmetro de Ginzburg-Landau em função da resistividade do material no estado normal  $\rho_n$ .

$$\kappa = \kappa_0 + 7500\sqrt{\gamma\rho_n}, \quad (3.105)$$

no qual  $\kappa_0$  é o parâmetro de Ginzburg-Landau para metal puro e  $\gamma$  é o coeficiente eletrônico do calor específico dado por  $\gamma = (\pi^2/3)D(E_F)k_B^2$ . E como o campo crítico é função de  $\kappa$  através da relação

$$B_{c2} = \kappa\sqrt{2}B_c, \quad (3.106)$$

em que  $B_c$  é o campo crítico termodinâmico, o aumento de  $B_{c2}$  observado em [75], pode ser explicado pela diminuição do livre caminho médio.

A dependência de  $B_{c2}$  com a temperatura no limite sujo foi descrita primeiramente por Maki [79] e a equação analítica foi posteriormente dada por Wethanmer, Helfand e Hohenberg (WHH) que também incluíram efeitos de spin paramagnético de Pauli, assim como efeito spin-órbita em condições de impurezas [80, 81]. A teoria WHH estabelece uma relação entre o campo crítico superior  $B_{c2}$  na temperatura reduzida  $t = T/T_c$ , com a inclinação  $dB_{c2}/dt$  em  $t = 1$  através de uma função  $h^*(t)$ , tal que

$$h^*(t) = \frac{B_{c2}(t)}{\left(\frac{-dB_{c2}}{dt}\right)_{T=T_c}}, \quad (3.107)$$

que depende do parâmetro de Maki  $\alpha$

$$\alpha = \frac{3e^2\hbar\gamma\rho_n}{2m_e\pi^2k_B^2} = 2,35\gamma\rho_n, \quad (3.108)$$

em que  $e$  é a carga elementar,  $m_e$  a massa do elétron e  $k_B$  a constante de Boltzmann. O parâmetro  $\alpha$  indica quanto o campo crítico superior  $B_{c2}$  diminui pela diferença de susceptibilidade entre o estado normal e supercondutor (limite paramagnético de Pauli) [79, 82]. A função  $h^*(t)$  também depende do parâmetro de espalhamento spin-órbita  $\lambda_{so}$ . Utilizando cálculo computacional numérico, os autores extrapolaram o valor do campo crítico  $B_{c2}$  em  $t = 0$  através da função  $h^*(t)$  como mostra a figura 3.21.

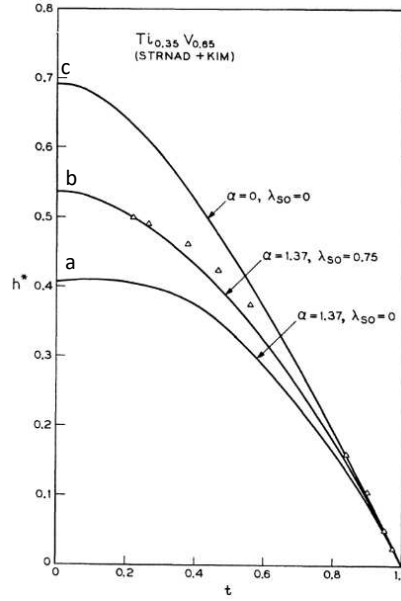


Figura 3.21: Curva de  $h^*(t)$  para a liga  $Ti_{0,35}V_{0,65}$ . Os triângulos são dados experimentais de [83]. As linhas contínuas são ajustes para (a)  $\alpha = 1,37$  e  $\lambda_{so} = 0$  que considera spin paramagnético mas não o efeito spin-órbita, (b)  $\alpha = 1,37$  e  $\lambda_{so} = 0,75$  para spin paramagnético e efeito spin-órbita e (c)  $\alpha = 0$  e  $\lambda_{so} = 0$  que não leva em conta nem o efeito spin-órbita nem o spin paramagnético.

Ao considerar o limite paramagnético de Pauli, o campo crítico superior  $B_{c2}$ , de acordo com Maki [79], pode ser escrito como

$$B_{c2} = \frac{B_{c2(\alpha=0)}B_{cP}}{\sqrt{2B_{c2(\alpha=0)}^2 + B_{cP}^2}}. \quad (3.109)$$

$B_{cP}$  corresponde ao campo no qual a diferença de energia entre o estado normal e supercondutor, devido à suscetibilidade de Pauli, se torna suficiente para destruir a supercondutividade. Clogston [84] chegou em uma simples relação para  $B_{cP}$  que depende apenas da temperatura crítica do material no zero absoluto. Sabe-se pelas relações termodinâmicas que a diferença de energia livre entre o estado normal e supercondutor é

$$F_N = F_S + \frac{B_c^2}{2\mu_0}. \quad (3.110)$$

No estado normal, o material possui suscetibilidade paramagnética  $\chi_p$  devido à densidade de estados no nível de Fermi. Considerando a aplicação de campo magnético, a energia livre diminui por um valor de  $1/2\chi_p B_c^2$ . Pela teoria BCS, no estado supercondutor, a suscetibilidade é nula no zero absoluto devido aos elétrons no nível de Fermi [51]. Considerando a diminuição da

energia livre por um campo aplicado, a equação 3.110 pode ser reescrita como

$$F_N = F_S + \frac{1}{2}\chi_p B_{cP}^2, \quad (3.111)$$

em que  $B_{cP}^2$  é o campo paramagnético limite de Pauli, também conhecido como campo limite de Chandrasekhar-Clogston [84, 85, 86]. Se um par de Cooper for exposto a um campo magnético forte o suficiente, ambos os spins de elétrons ficarão alinhados com o campo magnético e o par será descorrelacionado de acordo com o princípio de exclusão Pauli.  $B_{cP}$  é o campo crítico no qual este fenômeno ocorre.

A susceptibilidade em termos da densidade de estados, assumindo o fator  $g=2$ , é

$$\chi_p = 2\mu_B^2 D(E_F), \quad (3.112)$$

em que  $\mu_B = e\hbar/2m_e = 9,274 \times 10^{-24} J/T$  é o magneton de Bohr. Pela teoria BCS, a diferença de energia livre entre o estado normal e supercondutor é dada por

$$F_N - F_S = \frac{1}{2}D(E_F)\Delta^2, \quad (3.113)$$

no qual  $\Delta = 1,75k_B T_c$ , é o gap de energia supercondutor no zero absoluto. Desta forma, Clogston [84] mostra que o campo paramagnético de Pauli pode ser escrito apenas em função da temperatura crítica<sup>†</sup>, ou seja,

$$B_{cP} = \frac{\Delta}{\mu_B\sqrt{2}} = \frac{1,75k_B T_c}{\mu_B\sqrt{2}} = 1,841T_c. \quad (3.114)$$

Como a variação do paramagnetismo diminui a energia livre da fase normal, é de se esperar que o campo crítico superior seja limitado por este efeito, como mostra a equação 3.114.

A influência do espalhamento spin-órbita, abordado por Maki e pela teoria WHH, foi rigorosamente estudada por Hake em 1967, que computou a função  $h^*$  para diferentes valores de  $\alpha$  e  $\lambda_{so}$  [87]. Hake concluiu em seu trabalho que a dependência de  $h^*$  com  $\alpha$  diminui a medida que o parâmetro do espalhamento spin-órbita aumenta. Esta dependência deve-se ao fato de que o espalhamento spin-órbita aumenta a susceptibilidade de Pauli no estado supercondutor. O parâmetro  $\lambda_{so}$  foi estabelecido por Hake ao comparar a incerteza de energia introduzida por esse espalhamento com o gap de energia, de modo que

$$\lambda_{so} \equiv \frac{\hbar}{3\pi k_B T_c \tau_{so}}, \quad (3.115)$$

---

<sup>†</sup>Esta predição (eq.3.114) assume o fato de que o campo crítico superior não supere o valor de  $B_{cP}$ .

em que  $\tau_{so}$  é o tempo de relaxação devido ao espalhamento spin-órbita.

Em [79], Maki mostra que o campo limite de Pauli  $B_{cP}$  se relaciona com o parâmetro  $\alpha$  através de

$$\alpha = \frac{\sqrt{2}B_{c2}(0)}{B_{cP}(0)}, \quad (3.116)$$

que também pode ser rearranjada e escrita em função da inclinação  $dB_{c2}/dT$ , ou seja,

$$\alpha = \mathbb{k} \left( \frac{-dB_{c2}}{dT} \right)_{T=T_c} \quad (3.117)$$

com  $\mathbb{k} = 0,532K/T$ . A equação 3.117 é útil para extrair o valor de  $\alpha$  em experimentos de campo crítico superior em função da temperatura  $T$ . Desconsiderando o campo paramagnético de Pauli, a função  $h^*(t=0)$  satura em um valor de 0,693 de forma que a equação 3.117 pode ser escrita como

$$B_{c2}(0) = 0,693T_c(0) \left( \frac{-dB_{c2}}{dT} \right)_{T=T_c} \quad (3.118)$$

Esta é a conhecida fórmula de WHH, comumente usada [61, 88, 89, 90] para extrair o valor do campo crítico superior  $B_{c2}(0)$  através da inclinação  $dB_{c2}/dT$  próximo da temperatura crítica em experimentos  $B_{c2}(T)$ . Conhecer o valor de  $B_{c2}(0)$  é útil para determinar o comprimento de coerência  $\xi_{GL}$  pela equação linearizada de Ginzburg Landau, isto é [59]

$$\xi_{GL} = \sqrt{\frac{\phi_0}{2\pi B_{c2}(0)}}, \quad (3.119)$$

em que  $\phi_0$  é o fluxo magnético quântico.

### 3.11 Spintrônica supercondutora

Em 1964, de Gennes [6] aborda o efeito de proximidade entre supercondutores e ferromagnetos isolantes (FI). Gennes previu teoricamente que duas camadas ferromagnéticas isolantes, com magnetizações M1 e M2, podem ficar acopladas quando um filme supercondutor de espessura  $d_s < \xi_0$  for intercalado entre camadas ferromagnéticas em uma pseudo válvula de spin supercondutora. Gennes mostrou que temperatura crítica do filme supercondutor é maior se FI1 e FI2 estiverem alinhadas de forma antiparalelas, e menor se FI1 e FI2 estiverem paralelas. Esta previsão foi confirmada experimentalmente por Hauser [91] 1969 em uma estrutura de  $Fe_3O_4/In/Fe_3O_4$ , e por Deutscher e Meunier [92] no mesmo ano, em um filme In entre camadas

de FeNi e Ni oxidadas (ver figura 3.22).

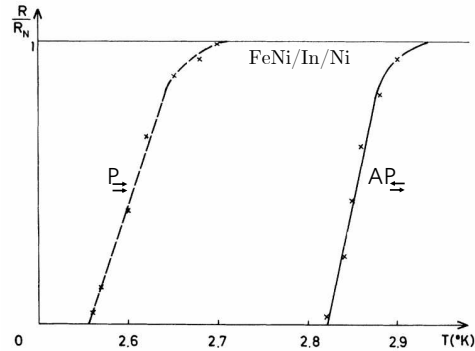


Figura 3.22: Observação do efeito de válvula de spin supercondutora feita por Deutscher e Meunier [92] em um filme In entre as camadas de FeNi e Ni oxidadas por plasma de oxigênio para isolar as camadas FM da SC. A linha tracejada, após aplicação do campo 1T paralelo às camadas ferromagnéticas e a linha sólida, após aplicação do campo -1T e subsequentemente um campo de +0,03T para retornar a magnetização da camada de FeNi.

Enquanto nos sistemas FM/SC os elétrons podem tunelar através das camadas ferromagnéticas, nos sistemas FI/SC os elétrons são confinados dentro da camada SC devido à natureza isolante do FI [93]. Ao mesmo tempo, os spins localizados nas camadas atômicas superficiais do ferromagneto interagem entre si através dos elétrons de condução do metal. Essa interação indireta do tipo RKKY [94] fornece acoplamento entre as camadas ferromagnéticas.

Em uma estrutura FI1/SC/FI2, os elétrons de condução próximos à FI1 sentem apenas a primeira camada atômica e são refletidos para dentro do SC, que vão em direção à outra camada FI2 e o processo se repete como mostra a figura 3.23.

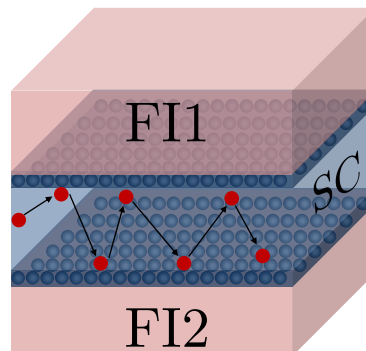


Figura 3.23: Válvula de spin supercondutora FI1/SC/FI2 com elétron confinado na camada supercondutora devido à reflexões nas camadas ferromagnéticas.

Considerando que a espessura do SC seja menor que o comprimento de coerência [6], o campo

de troca médio sentido pelo elétron de condução pode ser escrito como

$$\bar{h}(\theta) = 2|\Gamma|S \left( \frac{a}{d_s} \right) \cos \left( \frac{\theta}{2} \right) \quad (3.120)$$

no qual  $a$  é o parâmetro de rede do supercondutor,  $d_s$  a espessura da camada supercondutora na válvula e  $2|\Gamma|S \cdot S_e$  a integral de troca do acoplamento entre o spin  $S$  ferromagnético da camada FI e o elétron de condução, de spin  $S_e$ , do último átomo da camada metálica. Dependendo do método de crescimento do filme, a interface FI/SC pode conter uma pequena camada de óxido, portanto o valor de  $\Gamma$  dado pelo modelo [68] pode ser menor quando comparado com interfaces limpas.

Caso as camadas FI estejam alinhadas paralelamente ( $\theta = 0$ ), o campo de troca médio deve ser tal que,  $\bar{h}(\theta = 0) \sim T_{cbulk}$ , portanto a equação 3.120 pode ser reescrita como

$$|\Gamma|S \sim k_B T_{cbulk} \frac{d_s}{2a} \sim E_F \frac{d_s}{\xi_0}, \quad (3.121)$$

no qual  $E_F$  é a energia de Fermi na camada supercondutora. Em [6], de Gennes mostrou que, ao inserir o campo de troca  $\bar{h}(\theta)$  (eq. 3.120) na equação de Sarma [95], o SC só estará no estado supercondutor somente quando  $\bar{h}(\theta) < \frac{1}{2}\Delta\sqrt{2}$ , no qual  $\Delta$  é o gap supercondutor dado pela teoria BCS como  $\Delta = 1,76k_B T_c$  [51]. Quando  $\bar{h}(\theta = 0) > \frac{1}{2}\Delta\sqrt{2}$ , haverá um ângulo crítico  $\theta_c$  abaixo no qual a energia é suficiente para destruir a supercondutividade, isto é

$$\cos(\theta_c/2) = \frac{\Delta}{h\sqrt{2}}. \quad (3.122)$$

A figura 3.24 mostra a energia do supercondutor em função do ângulo da magnetização das camadas FI adjacentes.

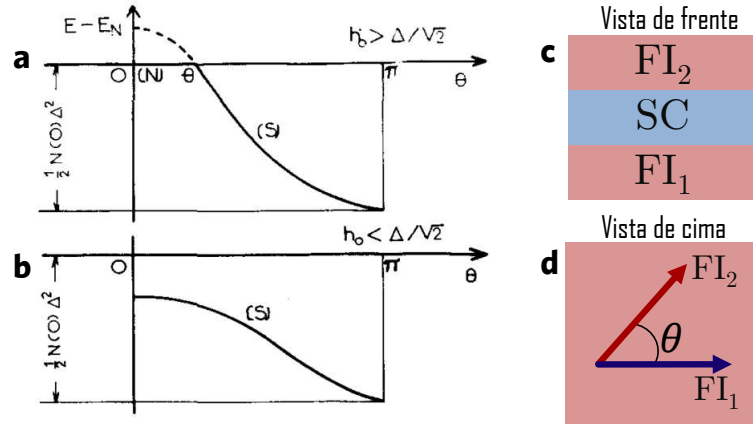


Figura 3.24: Energia  $E$  da camada supercondutora em função do ângulo da magnetização entre as duas camadas ferromagnéticas para (a) energia de troca  $\bar{h}(\theta = 0) > \frac{1}{2}\Delta\sqrt{2}$ , (b) para energia de troca menor que  $\Delta/\sqrt{2}$  [6]. (c) e (d) mostram o diagrama da magnetização da tricamada para vista de frente e de cima respectivamente.

Caso a energia de troca for maior que  $\Delta/\sqrt{2}\mu_B$  (fig. 3.24 (a)), o estado supercondutor pode ser totalmente destruído quando a magnetização das camadas FI estiverem paralelas ( $\theta = 0$ ). Porém, quando a energia de troca sentida pelo SC for menor que  $\Delta/\sqrt{2}\mu_B$  (fig. 3.24 (b)), a supercondutividade é apenas enfraquecida para  $\theta = \pi$ , o que resulta em diferentes temperaturas de transição entre a configuração paralela e antiparalela ( $T_c^P \neq T_c^{AP}$ ) como mostra a figura 3.25.

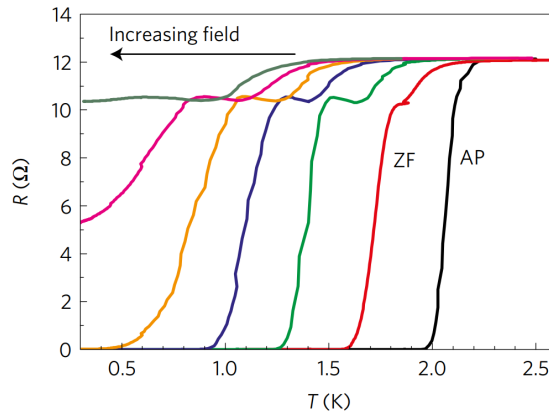


Figura 3.25: Diferentes temperaturas críticas para a estrutura GdN/Nb/GdN em diferentes campos magnéticos externos. As curvas mostram o alinhamento AP, a campo zero e o aumento do alinhamento P no campo crescente após a saturação [96].

Em trabalhos recentes de 2016 [96], Blamire utiliza GdN(3nm)/Nb(8nm)/GdN(5nm) e mostra que estruturas do tipo FI/SC/FI também podem apresentar magnetorresistência infinita (figura 3.26), de modo que a estrutura alterna entre o estado supercondutor (resistência

nula com configuração antiparalela) e não supercondutor (alta resistência com configuração paralela) quando o campo magnético externo é aplicado. O termo magnetorresistência "infinita", apesar de estranho, é utilizado na literatura [62, 96, 5], dada a definição de magnetorresistência pela equação 2.54.

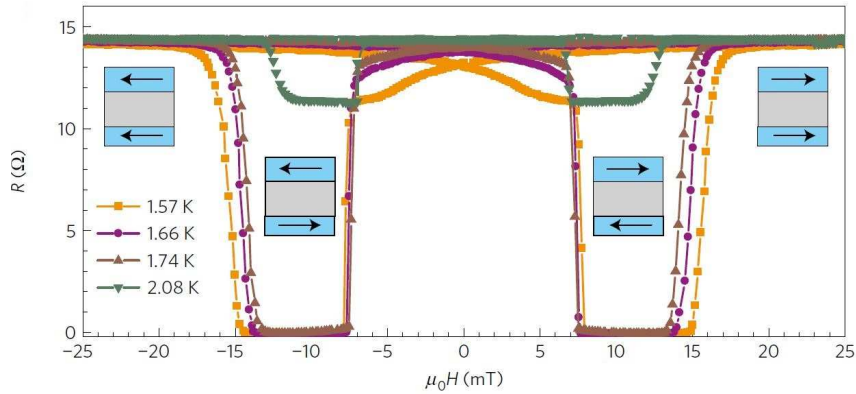


Figura 3.26: Resistência em função do campo magnético aplicado da estrutura GdN/Nb/GdN em temperaturas diferentes. As figuras indicam a configuração magnética da camada de GdN [96]

Como mostra o trabalho de J. Moodera com EuS/Al/EuS [62], este fenômeno só ocorre em faixas bem próximas da temperatura crítica do supercondutor (ver figura 3.27 b), pois a supercondutividade encontra-se levemente enfraquecida pela energia térmica, e uma pequena perturbação causada pelo efeito de proximidade pode ativar ou desativar o estado supercondutor. Este efeito é chamado de *superconducting spin switch* (SSE).

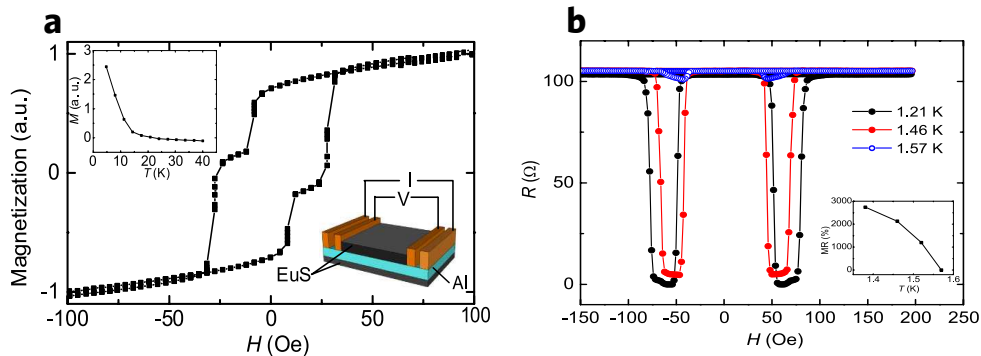


Figura 3.27: (a) Histerese magnética de EuS(1,5nm)/Al(3,5nm)/EuS(4nm) realizada em uma temperatura de  $T=4K$  e (b) magnetorresistência da estrutura para intervalos de temperaturas diferentes mostrando que abaixo de  $T=1,25K$  a magnetorresistência é infinita [62].

Nos últimos anos, análogos supercondutores de válvulas de spin tem sido ampla-

mente investigados para aplicações em dispositivos adequados à tecnologias de memória criogênica [97, 98, 99]. Outro tipo de estrutura proposta [100] consiste em duas camadas FM separadas por um metal normal (MN) e conectadas a um SC para formar uma válvula do tipo SC/FM1/MN/FM2. Experimentos baseados nesta configuração mostraram uma variação da temperatura  $\Delta T_c = T_c^{AP} - T_c^P$  da ordem de 19 mK [101]. Trabalhos com materiais magnéticos com anisotropia perpendicular com configuração do tipo CoPt/Nb/CoPt também já foram reportados [102] com  $\Delta T_c = 32$  mK. Os trabalhos mais recentes nesta área incluem o estado tripleto de spin dos pares nas válvulas de spin. Em 2001, Bergeret, Volkov e Efetov [103] previram que em um sistema com uma magnetização não homogênea na interface SC/FM poderia gerar pares de Cooper no estado tripleto através de *spin mixing*. Este processo gera spin tripleto  $S_z = 0$  a partir de spins singleto através de mudanças de fase dependente de spin que os elétrons experimentam quando se propagam através de uma região ferromagnética, ou quando dispersos em uma interface ferromagnética. Quando a magnetização do sistema é não homogênea, de tal forma que o eixo de quantização do spin varia espacialmente, o efeito da rotação do spin entra em ação, causando assim componentes spin tripleto. A vantagem destes sistemas é que o campo de troca criado pelo FM, que anteriormente destruía a supercondutividade por alinhar os spins singleto, já não provoca este efeito destrutivo, de modo que supercondutividade e ferromagnetismo podem deixar de ser antagonistas. Em trabalhos recentes de 2015, com válvulas de spin supercondutora de spin tripleto [104], a variação da temperatura  $\Delta T_c$  chega a alcançar 800 mK.

## 4 Métodos

### 4.1 Construção de um susceptômetro AC

Nesta seção iremos apresentar uma maneira simples e de baixo custo financeiro para caracterizar tanto materiais magnéticos quanto supercondutores. Este equipamento foi utilizado na determinação do campo coercivo de nossa estrutura com sensibilidade para filmes finos da ordem de 10nm. Esta seção explica a construção do aparato experimental e a implementação da técnica no laboratório.

#### 4.1.1 Introdução

Os avanços na tecnologia dos instrumentos eletrônicos alcançados durante a Segunda Guerra Mundial (1940-1945) deram um impulso nos equipamentos baseados em indução magnética. O magnetômetro de amostra vibrante (MAV), desenvolvido por Simon Foner em 1955, é um dos equipamentos mais difundidos em laboratórios de todo mundo devido à sensibilidade na caracterização de materiais magnéticos. O MAV foi o precursor do susceptômetro, que foi inicialmente desenvolvido para servir de base em termômetros de criogenia, mas hoje é utilizado amplamente na caracterização de materiais magnéticos e supercondutores pois fornece informações intrínsecas do material, como por exemplo campo coercivo, temperatura de transição magnética e temperatura crítica de supercondutores. A técnica de susceptibilidade AC possibilita o controle da frequência do campo alternado, que fornece informações sobre processos de relaxação e de absorção do campo pela amostra. Em uma medida AC, o momento da amostra varia quando um campo magnético AC é aplicado, em resposta, a dinâmica da magnetização da amostra pode ser estudada através da componente real  $\chi'$ , que representa a componente em fase com o campo aplicado e é uma medida da fração do momento magnético induzido que consegue acompanhar simultaneamente a oscilação do campo aplicado. A componente imaginária  $\chi''$  representa a componente fora de fase e fornece informações das perdas dissipativas, ou seja, da energia absorvida do campo magnético pela amostra.

No caso dos supercondutores, um campo magnético de baixa frequência (1 Hz a 1 kHz) é aplicado na amostra pela bobina. Quando a amostra encontra-se no estado normal, o campo magnético produzido pela bobina se estende pela amostra (em frequências abaixo de 1000 Hz, a profundidade de penetração do campo é tipicamente maior que as dimensões da amostra) contribuindo na impedância do sistema que é diferente quando a amostra não está inserida no

equipamento. Quando a amostra se torna supercondutora, o campo é excluído de seu interior e ocorre uma mudança drástica na indutância das bobinas devido às correntes de blindagem e das perdas magnéticas pelo movimento das linhas de fluxo na amostra.

#### 4.1.2 Princípio de funcionamento

O comportamento dos materiais, sob ação de um campo externo, é determinado pela origem de seus dipolos magnéticos ou momentos magnéticos e pela natureza da interação entre eles. O momento angular dos átomos é responsável pela origem dos momentos magnéticos em um material, ou seja, as propriedades magnéticas possuem uma natureza quântica. O estado magnético de um material é representado pela magnetização  $\vec{M}$ , que macroscopicamente é definida como a soma dos momentos de dipolo magnético total por unidade de volume  $\Delta V$  que deve ser suficientemente grande para que haja uma boa média macroscópica, porém pequeno em relação ao tamanho da amostra para que  $\vec{M}$  represente uma propriedade local

$$\vec{M} = \lim_{\Delta V \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta V} \sum_i \vec{\mu}_i, \quad (4.1)$$

em que  $\mu_i$  representa o momento magnético de cada átomo, que é somada por todo volume  $\Delta V$ . As interações magnéticas que ocorrem em um material podem ser relacionadas com duas grandezas vetoriais, campo magnético  $\vec{H}$ , que está associado com a corrente que gera o campo, e a indução magnética  $\vec{B}$ , que está relacionada tanto com a corrente de condução quanto com a magnetização do meio.

Quando um material é submetido a um campo magnético  $\vec{H}$ , em resposta, o material irá apresentar uma magnetização  $\vec{M}$  como consequência da orientação dos dipolos magnéticos. A susceptibilidade  $\chi$  mede a capacidade de um material magnetizar-se sob a ação de um campo externo, que é dada pela relação

$$\vec{M} = \chi \vec{H}. \quad (4.2)$$

A susceptibilidade AC utiliza pontes de indutância mútuas [105] na qual obtêm-se informações sobre variações do momento magnético da amostra, ou seja, fornece indicações da declividade  $dM/dH$  da curva de magnetização. A magnetização da amostra pode ser entendida como o momento magnético por unidade de volume e  $H_{AC}$  o campo de modulação.

O princípio de medida é baseado no método da indutância mútua, que consiste em uma bobina primária  $P_1$  responsável por aplicar campo AC e uma bobina secundária coletora de sinal que é composta por duas bobinas  $S_1$  e  $S_2$  enroladas em fases opostas como mostra a

figura 4.1 .

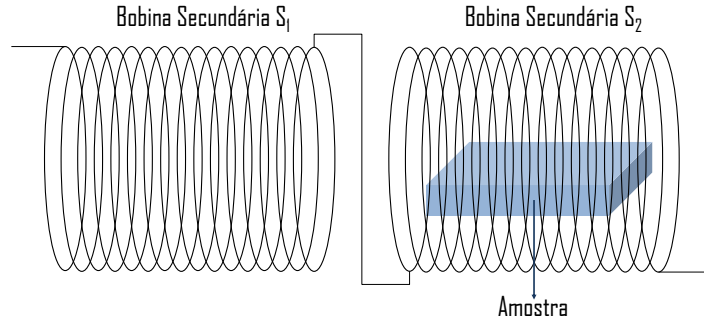


Figura 4.1: Bobinas secundárias  $S_1$  e  $S_2$  enroladas em fases opostas com a amostra inserida.

Se aplicarmos um campo magnético variável  $\vec{H}_a = \vec{H}_{a0} \cos \omega t$ , a amostra em reposta apresentará um fluxo  $\vec{B}$  com uma certa diferença de fase entre com o campo aplicado. Como o resultado é uma função de onda periódica distorcida, nem  $\vec{B}$  nem  $\vec{H}$  podem ser expressas como uma função senoidal de uma única frequência, logo, é necessário que a densidade de fluxo local médio  $\langle B \rangle$  seja expressa como uma expansão de Fourier.

$$\langle B \rangle = \mu_0 H_{a0} \sum_{n=1}^{\infty} [\mu'_n \cos(n\omega t) + \mu''_n \sin(n\omega t)] \quad (4.3)$$

Onde  $\mu'_n$  e  $\mu''_n$  são a permeabilidade real e imaginária respectivamente. Entretanto a permeabilidade  $\mu$  é definida em termos da susceptibilidade  $\chi$

$$\mu = 1 + \chi \quad (4.4)$$

portanto

$$\chi'_1 = \mu'_1 - 1, \quad (4.5)$$

$$\chi''_1 = \mu''_1 \quad (4.6)$$

onde  $\chi'_1$  e  $\chi''_1$  são, respectivamente, as partes real e imaginária de  $\chi_1$ . Multiplicando ambos lados da equação 4.3 por  $\cos \omega t$  ( $\sin \omega t$ ) e integrando sobre  $t$  de 0 a  $2\pi/\omega$ , é possível obter a parte real e imaginária da susceptibilidade em função da indução magnética  $\langle B \rangle$ .

$$\chi'_1 = \left[ \frac{\omega}{\pi \mu H_{a0}} \int_0^{2\pi/\omega} \langle B \rangle \cos(\omega t) dt \right] - 1, \quad (4.7)$$

e

$$\chi_1'' = \left[ \frac{\omega}{\pi\mu H_{a0}} \int_0^{2\pi/\omega} \langle B \rangle \text{sen}(\omega t) dt \right] \quad (4.8)$$

na qual  $\chi_1'$  fornece a expressão quantitativa do quanto o fluxo magnético penetra na amostra.

Quando a amostra é inserida no interior de uma bobina secundária  $S_1$  ou  $S_2$ , uma pequena voltagem adicional é detectada por um voltímetro conectado nos terminais de  $S_1$  e  $S_2$ . A voltagem medida será o resultado da soma entre a voltagem induzida sem a amostra  $V_{sa}$  e a voltagem gerada quando a amostra está inserida na bobina secundária  $V_{ca}$  de modo que  $V_{total} = V_{sa} + V_{ca}$ . As bobinas secundárias  $S_1$  e  $S_2$  devem ter as mesmas dimensões e o mesmo número de voltas, porém enroladas em sentidos opostos para que a força eletromotriz induzida seja nula na ausência da amostra, caso contrário  $V_{sa} \gg V_{ca}$ , impossibilitando a medida. Porém, construir duas bobinas idênticas é impossível, mesmo com equipamentos específicos para tal, o que pode ocasionar alguma voltagem residual mesmo quando a amostra não está inserida no equipamento. Para contornar este sinal residual, os terminais das bobinas secundárias  $S_1$  e  $S_2$  podem ser ligados a um Amplificador Lock-In, que pode zerar o sinal não desejado por ajuste de *offset*, e apenas o sinal da amostra é detectado. A voltagem induzida adicional  $V(t)$  gerada quando a amostra é inserida na bobina secundária é dada pela lei de Faraday

$$V(t) = -\frac{d\phi}{dt} \quad (4.9)$$

em que  $\phi$  representa o fluxo magnético através da bobina. Sendo  $M(t)$  a magnetização de um volume  $V$  da amostra, o fluxo magnético da bobina de  $N$  voltas e raio  $a$  é dado por

$$\phi = \mu_0 \pi a^2 N M(t) \quad (4.10)$$

Portanto a voltagem medida é

$$V(t) = -\mu_0 \pi a^2 N M(t) / dt \quad (4.11)$$

Mas para as componentes real e imaginária da susceptibilidade,  $M(t)$  também deve ser expressa em uma expansão de Fourier

$$M(t) = \sum_{n=1}^{\infty} H_{a0} [\chi_n' \cos(n\omega t) + \chi_n'' \text{sen}(n\omega t)] \quad (4.12)$$

e voltagem

$$V(t) = V_0 \sum_{n=1}^{\infty} n[\chi'_n \sin(n\omega t) + \chi''_n \cos(n\omega t)] \quad (4.13)$$

Tomando  $n=1$  em virtude do Lock-In obter o sinal em ressonância com o primeiro harmônico, temos

$$V_1 = V_0(\chi' \sin \omega t - \chi'' \cos \omega t) \quad (4.14)$$

no qual  $V$  é a voltagem aplicada no solenoide primário e as susceptibilidades  $\chi'$  e  $\chi''$  mostram o comportamento de histerese do fluxo na amostra [106].

### 4.1.3 Montagem do equipamento

A construção do susceptômetro foi totalmente manual e consiste em quatro solenoides. O primário  $P_1$  para aplicar campo magnético AC, dois secundários  $S_1$  e  $S_2$ , que deve ser conectado a um voltímetro e é utilizado para detectar sinal, e por fim o último solenoide  $P_2$  que cobre todos os anteriores ou um eletroímã para aplicar campo DC e magnetizar a amostra. O solenoide  $P_1$  deve ter pelo menos 2000 voltas em um espaço de 4 cm, não importa o número de camadas.

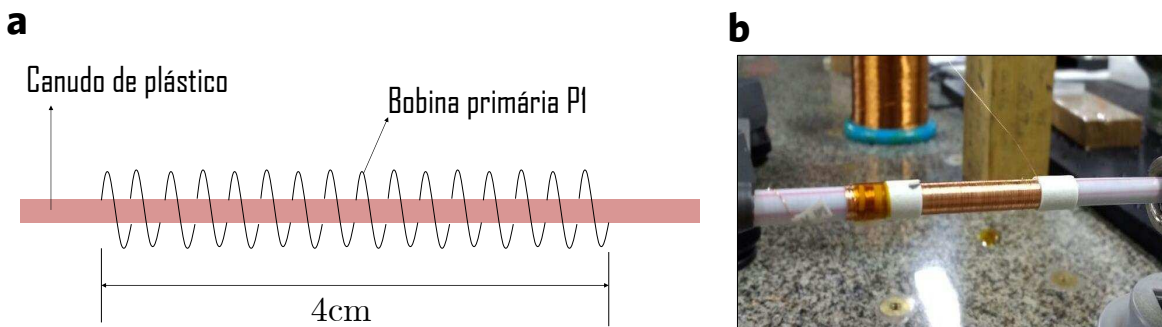


Figura 4.2: (a) Esquema de montagem do solenoide primário  $P_1$  e (b) montagem experimental realizada com 2000 voltas.

Para a próxima etapa são necessários dois solenoides rotacionados em sentidos opostos em relação ao outro por cima do primeiro solenoide  $P_1$ . Cada um deve ter pelo menos 1000 voltas para garantir que o sinal possa ser lido pelo Lock-in. O motivo de se construir as bobinas secundárias por cima da primária é pela facilidade experimental de enrolá-las manualmente sobre a primária  $P_1$ .

Por fim, o último solenoide deve cobrir todos os outros e o número de voltas dependerá do quanto de campo DC deseja-se aplicar, por exemplo: para um fio de diâmetro  $D=0,28$  mm, aproximadamente 800 voltas enrolado em um comprimento  $d=4$  cm, é possível obter apro-

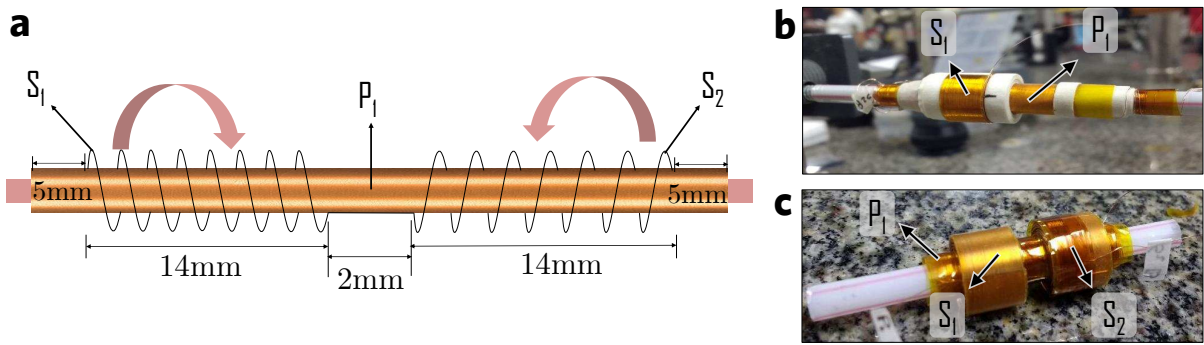


Figura 4.3: (a) Esquema de montagem dos solenoide S1 e S2 enrolados por cima do solenoide primário P1. (b) Suceptômetro com o solenoide S1 finalizado e (c) finalizado com todas bobinas enroladas.

ximadamente um campo  $H=50$  Oe para cada  $i=0,2$  A, o que é o suficiente. Para realização das medidas, o solenoide  $P_1$  deve ser conectado a uma fonte AC,  $S_1$  e  $S_2$  a um voltímetro e  $P_2$  conectado a uma fonte DC. A amostra deve ir dentro do canudo centralizado em  $S_1$ . A indutância  $L$  deve ser a mesma tanto em  $S_1$  quanto em  $S_2$  quando a amostra não está inserida, ou seja,  $S_1$  e  $S_2$  devem ter o mesmo número de voltas. Portanto ao construir os solenoides secundários é importante separar alguns centímetros de fio extra antes começar a enrolá-los, pois isto facilitará a correção do número de voltas ao finalizar.

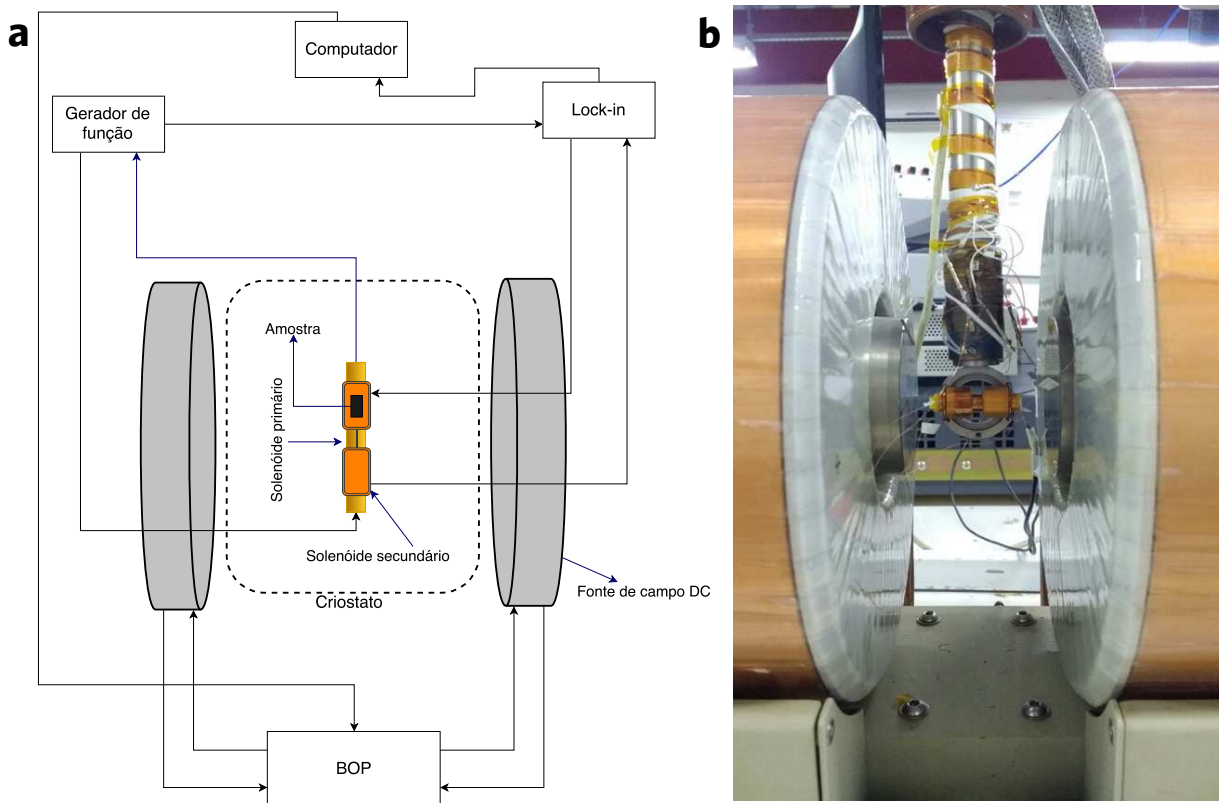


Figura 4.4: Esquema da montagem completa do magnetômetro junto ao lock-in e computador.

O último solenoide pode ser substituído por um sistema de eletroímã de campo DC ligado a uma BOP (*Bipolar Operation Power Supplies*), que é utilizado para controlar a magnetização da amostra.

## 4.2 Sputtering

O Sputtering é uma técnica muito utilizada para crescimento de filmes finos em substratos. A técnica é baseada no bombardeamento de íons de gases (plasma) sobre um material alvo, que por sua vez evapora e é depositado sobre o substrato. No processo de sputtering geralmente são utilizados gás de argônio, uma vez que este elemento é inerte e ao colidir com o material alvo consegue retirar átomos sem sofrer nenhum tipo de interação como ligações químicas. Todo o processo ocorre dentro de uma câmara em alto vácuo para que a amostra tenha uma boa qualidade sem a presença de impurezas. Estabelece-se uma diferença de potencial entre o material alvo e o substrato de modo que uma descarga elétrica é gerada para produzir o plasma, que por sua vez, são acelerados contra o alvo. Como os átomos sofrem muitas colisões até chegarem ao substrato, efeitos de pressão dentro da câmara e temperatura do substrato possuem grande influência na técnica. A figura 4.5 ilustra o princípio de funcionamento do sputtering.

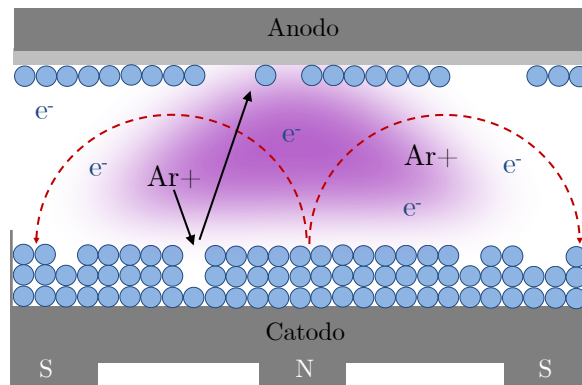


Figura 4.5: Diagrama do princípio de funcionamento do magnetron sputtering. Íons de Ar são acelerados contra um material alvo arrancando átomos que são depositados sobre um substrato que fica acoplado no anodo. Sobre o alvo é colocado um ímã para que o campo magnético direcione os íons de forma mais eficiente.

Como o campo magnético pode atrair o plasma, uma outra maneira de aumentar a eficiência do sistema é adicionar ímãs em baixo do material alvo para que o plasma seja focado no mesmo. Este sistema tem o nome de Magnetron Sputtering [107]. Para materiais bom condutores como Tântalo, Tugstênio e outros metais, o sistema utiliza fonte DC, uma vez o material alvo possui elétrons livres o suficiente para neutralizar os íons  $Ar^+$  que se chocam, não

ocorrendo o acúmulo de íons sobre o alvo. Já para materiais com pouca condutividade como óxido de Alumínio, a fonte utiliza um sinal alternado de alta frequência, ou como é chamada, RF sputtering (*radio frequency*). Como o material não possui tanto elétrons livres, ocorre um acúmulo de  $Ar^+$  sobre o alvo, impedindo que o mesmo seja bombardeado. O RF sputtering tem o objetivo de alternar o pólo do catodo e todos os íons positivos acumulados são repelidos de volta ao sistema, mantendo assim o plasma [108].

Outra maneira de utilizar o sputtering é incluir outros gases além do Argônio, como por exemplo Nitrogênio, que foi o utilizado neste trabalho. É adicionado na câmara uma porcentagem de Argônio e outra de Nitrogênio, que juntamente com o material alvo Nióbio, formam o composto nitreto de nióbio (NbN). Este processo que inclui outros gases além do Argônio é chamado de Sputtering reativo [109].

### 4.3 Microscopia de força magnética (MFM)

O microscópio de varredura por sonda (SPM - Scanning Probe Microscope) abrange uma variedade de técnicas de caracterização de superfícies, incluindo a microscopia de força atômica (AFM - Atomic Force Microscopy) e a microscopia de força magnética (MFM - Magnetic Force Microscopy). A aquisição de imagens consiste em aproximar uma ponta da superfície da amostra até que haja interação física entre elas. Isso produz uma deflexão de um cantilever (suporte da ponta). Esta deflexão é medida por um laser que reflete no cantilever e o sinal é medido por um detector. As imagens são geradas pela deflexão do feixe de laser, causadas pela oscilação do cantilever, que por sua vez ocorre devido a topografia da amostra.

Na microscopia de Força magnética, utiliza-se uma ponta especial, coberta por material magnético. A distância entre a ponta e a amostra é mantida fixa (com a ponta contornando a topografia da amostra, previamente medida por AFM) e a interação entre o campo magnético da amostra e da ponta é medida, pela deflexão do cantilever. A interação dipolar magnética é de longo alcance e detecta-se usando o método AC, ou seja, mede-se gradiente de força entre a ponta e a amostra, sendo assim, o MFM é operado em modo não-contato, enquanto o AFM pode ser operado em modo contato ou contato intermitente.

## 5 Resultados de GSAs unidirecionais

### 5.1 Fabricação

Para a nanofabricação das amostras investigadas, um filme fino ferromagnético de permalloy ( $Ni_{0.8}Fe_{0.2}$ ) 20nm, precedido por 3nm de Ta para adesão e seguido da mesma espessura de Ta para proteção contra oxidação, foi crescido pela técnica de sputtering sobre substrato de silício sem a quebra do vácuo, como ilustrado na figura 5.1.

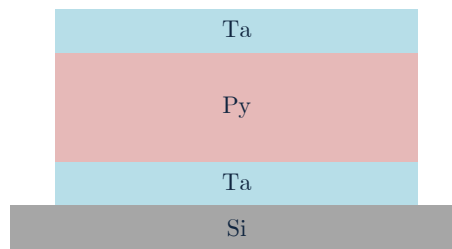


Figura 5.1: Esquema da tracamada de Ta(3nm)/Py(20nm)/Ta(3nm) utilizada para a criação das redes de GSAs.

O motivo de se utilizar permalloy na construção das ilhas é que ele possui uma anisotropia cristalina efetivamente nula, portanto, o formato retangular das ilhas cria uma anisotropia de forma que força os momentos magnéticos a se alinharem ao longo do eixo maior da nanoilha criando um comportamento de monodomínio. Como resultado, a magnetização de cada nanoilha pode ser interpretada como um macro-spin tipo Ising que se interage com outras ilhas predominantemente via interação dipolar.

Cada nanoilha de dimensão de  $3,0 \mu\text{m} \times 400 \text{ nm}$ , tamanho suficiente para ter bom sinal magnético e contraste de imagem sem perder sua magnetização de domínio único, foi criada a partir de litografia por feixe de elétrons, desenvolvida em 80nm de resist negativo AR-N7520 depositado via *spin-coating* sobre o substrato de Si e aquecida em placa quente por 1 minuto a uma temperatura de  $85^\circ\text{C}$ . Finalmente as amostras foram definidas por corrosão através de um feixe de íons provido por um *ion milling*, seguida da remoção eletroresistiva por plasma de oxigênio. Toda a sequência da construção dos GSAs estão ilustradas na figura 5.2.

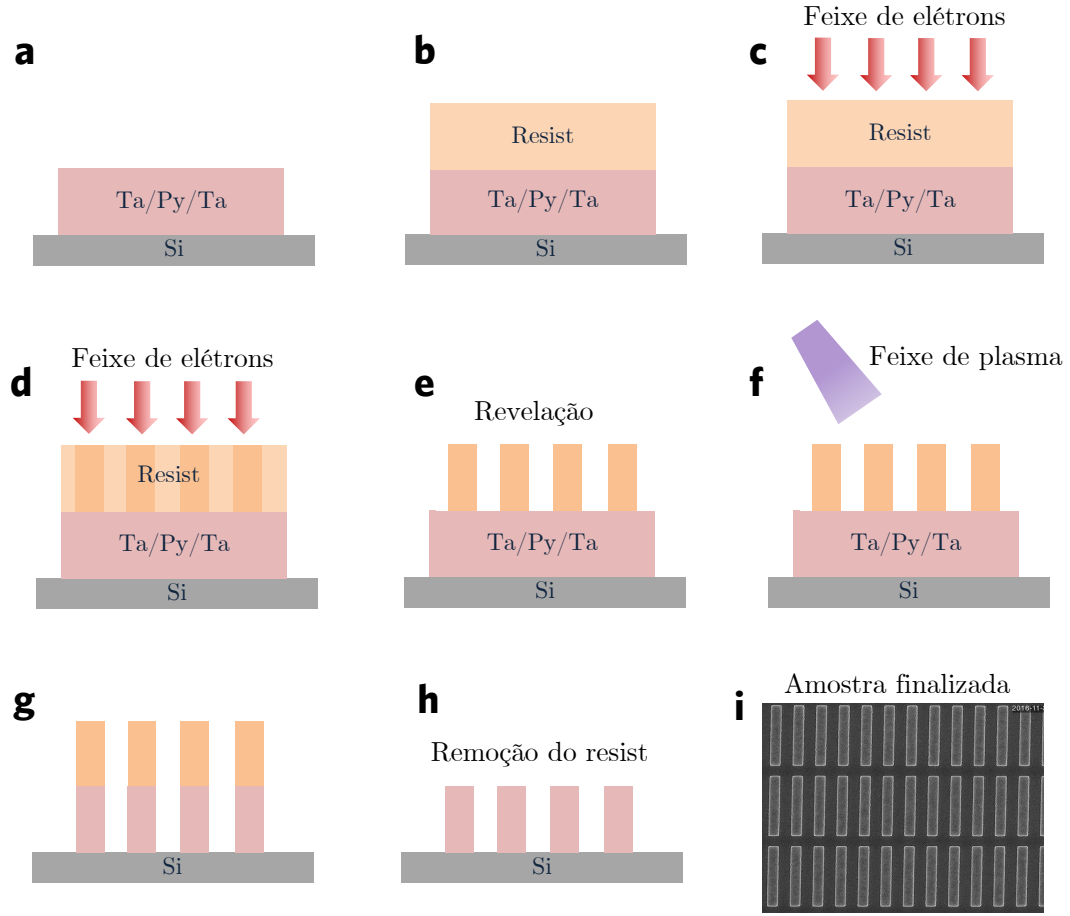


Figura 5.2: (a) Tricamada Ta/Py/Ta crescida por sputtering. (b) Deposição de 80nm de eletroresist negativo AR-N7520 por *spin-coating* a 350 rpm. (c) Exposição e (d) definição das nanoilhas via litografia por feixe de elétrons (EBL) com uma voltagem de aceleração de 100KV e uma dose de  $640\mu C/cm^2$ . (e) Remoção da área sensibilizada e (f) definição do contorno das nanoilhas através de feixe de íons incidido com ângulo de  $20^\circ$ . (g) Nanoilhas com resist não sensibilizado no topo. (h) Remoção do resist via plasma *ashing* de oxigênio e (i) verificação da estrutura via microscopia eletrônica de varredura (MEV).

Os diferentes parâmetros de rede utilizados para os arranjos unidirecionais dos nanomagnetos são apresentados na tabela 5.1, onde  $a$  é a separação lateral entre os nanomagnetos na direção  $x$ , e  $b$  é a separação longitudinal na direção  $y$  centro a centro. A amostra referência é a que chamamos de L20, com separação  $a = 1,15 \mu m$  e  $b = 3,55 \mu m$ , e a partir desta amostra, outras quatro foram feitas alterando a distâncias  $a$  e  $b$  entre as nanoilhas, como mostra a tabela 5.1.

| Amostra | $a$ ( $\mu\text{m}$ ) | $b$ ( $\mu\text{m}$ ) |
|---------|-----------------------|-----------------------|
| L00     | 0,95                  | 3,55                  |
| L40     | 1,35                  | 3,55                  |
| L20     | 1,15                  | 3,55                  |
| L22     | 1,15                  | 3,75                  |
| L24     | 1,15                  | 3,95                  |

Tabela 5.1: Parâmetro de rede para as cinco amostras investigadas com suas respectivas separações laterais  $a$  e longitudinais  $b$ .

A figura 5.3(a) mostra a boa qualidade da amostra finalizada, assim como as separações laterais e longitudinais no nosso sistema de referência. A topografia da estrutura obtida via microscopia de força atômica (AFM) é mostrada em 5.3(b). O estado fundamental, como mostra 5.3(c), foi obtido após o protocolo de desmagnetização realizado por campo magnético alternado de 1 kOe e frequência de 60 Hz aplicado na direção  $y$ , enquanto a amostra foi lentamente afastada do centro da bobina.

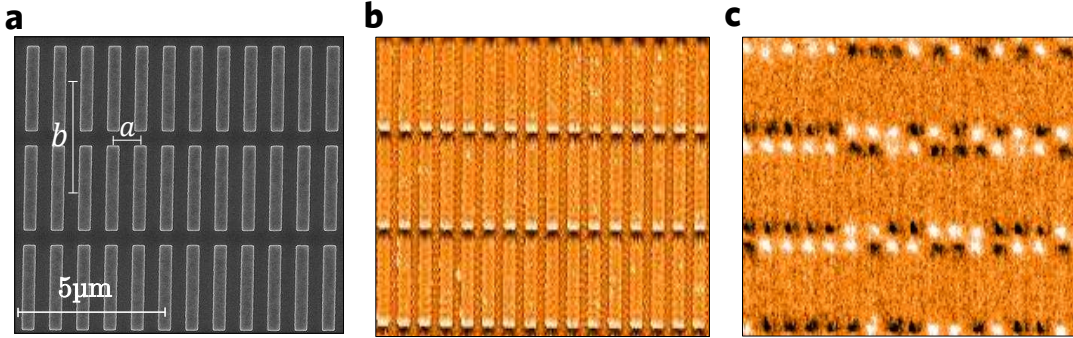


Figura 5.3: (a) Imagem da estrutura obtida por MEV mostrando a boa definição das nanoilhas. (b) Imagem topográfica da estrutura obtida por AFM e (c) mostra a microscopia de força magnética da mesma amostra apresentando os dipolos dos nanomagnetos representadas por pontos claros (pólo norte) e escuros (pólo sul).

## 5.2 Análise quantitativa

O fator de maior interesse deste trabalho é investigar como a mudança na distância lateral e longitudinal entre os nanomagnetos pode afetar o comportamento da magnetização, assim como a população de carga magnética, e a resposta do sistema ao campo magnético. As diferentes distâncias laterais e longitudinais entre as cinco amostras implicam em mudanças na interação dipolar entre primeiros vizinhos. Enquanto a variação na distância longitudinal fornece diferentes intensidades de cargas magnéticas pelo aumento da densidade da linha de campo

magnético nos vértices, a variação na distância lateral altera a interação entre as próprias cargas magnéticas na rede (ver figura 5.4), podendo modificar o valor do campo magnético necessário para girar a magnetização das ilhas.

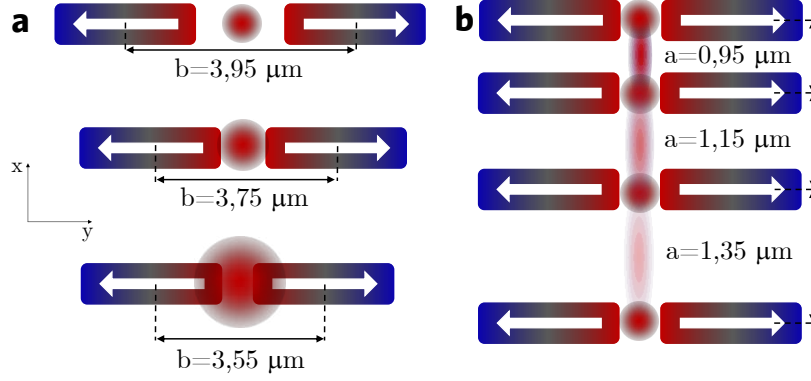


Figura 5.4: (a) Representação esquemática da variação da intensidade da carga magnética ao modificar as distâncias longitudinal  $b$  mas mantendo a distância lateral  $a$  constante. Caso a distância longitudinal permaneça fixa, (b) a intensidade de interação entre as cargas é modificada a medida que se varia a distância lateral entre as nanoilhas.

Uma vez que o volume da nossa nanoilha  $V = 2,4 \times 10^7 \text{ nm}^3$ , e considerando a magnetização de saturação do permalloy  $M \approx 8,6 \times 10^5 \text{ A/m}$  [110], o momento magnético por ilha é da ordem de  $\mu = MV \approx 2,1 \times 10^{-14} \text{ A}\cdot\text{m}^2$ , que equivale a  $\mu = 2,2 \times 10^9 \mu_B$ . A energia de interação entre as nanoilhas pode ser estimada separadamente para as redes laterais e longitudinais através da relação  $D = \mu_0 \mu^2 / 4\pi d^3$ , com  $d$  sendo a separação entre as nanoilhas centro a centro. Na direção longitudinal  $b$ , as constantes de acoplamento valem  $D_{b(L20)} = 9,85 \times 10^{-19} \text{ J}$ ,  $D_{b(L22)} = 8,36 \times 10^{-19} \text{ J}$  e  $D_{b(L24)} = 7,15 \times 10^{-19} \text{ J}$ . Esta faixa de energia é da ordem de  $\approx 10^6 \text{ K}$ , de modo que a temperatura necessária para girar a magnetização de uma ilha é muito maior que a temperatura de Curie  $T_{cPy} \approx 850 \text{ K}$  [37], tornando o sistema atômico. Como  $D$  é inversamente proporcional ao cubo da separação entre as ilhas, a energia dipolar diminui de forma mais pronunciável nas amostras L00, L20 e L40, cuja separação estão na direção  $x$ .

Nestes sistemas os monopólos se comportam como objetos pontuais que se interagem como cargas Coulombianas [7, 42] seguindo a relação

$$q = \frac{-\mu_0 Q_M^2}{4\pi} = -2,4 D d_y, \quad (5.1)$$

com  $Q_M$  sendo a carga magnética de cada monopolo, conseqüentemente dada por

$$Q_M = \pm \sqrt{\frac{4\pi|q|}{\mu_0}}. \quad (5.2)$$

Desta forma é possível obter o valor da intensidade das cargas magnéticas das redes longitudinais, com  $Q_M(L20) = 9,15 \times 10^{-9} A \cdot m$ ,  $Q_M(L22) = 8,67 \times 10^{-9} A \cdot m$  e  $Q_M(L24) = 8,23 \times 10^{-9} A \cdot m$ , que é da mesma ordem de grandeza da carga fundamental do monopolo de Dirac  $Q_D = 2\pi\hbar/\mu_0e \approx 3 \times 10^{-9} A \cdot m$ . A tabela 5.2 mostra os valores de  $D_a$  e  $D_b$  assim como as cargas magnéticas geradas nos vértices das nanoilhas para todas as amostras investigadas.

| Amostra | $D_a$ (J)             | $D_b$ (J)              | $Q_M$ (A·m)           |
|---------|-----------------------|------------------------|-----------------------|
| L00     | $5,1 \times 10^{-17}$ | $9,85 \times 10^{-19}$ | $9,15 \times 10^{-9}$ |
| L40     | $1,8 \times 10^{-17}$ | $9,85 \times 10^{-19}$ | $9,15 \times 10^{-9}$ |
| L20     | $2,9 \times 10^{-17}$ | $9,85 \times 10^{-19}$ | $9,15 \times 10^{-9}$ |
| L22     | $2,9 \times 10^{-17}$ | $8,36 \times 10^{-19}$ | $8,67 \times 10^{-9}$ |
| L24     | $2,9 \times 10^{-17}$ | $7,15 \times 10^{-19}$ | $8,23 \times 10^{-9}$ |

Tabela 5.2: Constante dipolar e carga magnética em função do parâmetro de rede para todas amostras.

### 5.3 Resultados experimentais

Nesta seção dos resultados foi investigado experimentalmente, através de medidas de microscopia de força magnética combinadas com a aplicação de campo magnético externo, a configuração de magnetização de baixa energia e a probabilidade de emergência de carga magnética, bem como a população de carga magnética e comportamento de magnetização sob varredura de campo magnético externo em função da distância de separação das nanoilhas nas direções  $x$  e  $y$ . Tal investigação é necessária para melhor compreensão sobre a influência da interação entre vizinhos, intensidade da carga magnética, assim como resposta do sistema mediante ao campo externo. Estas redes de GSAs podem ser utilizadas posteriormente como aplicações em dispositivos spintrônicos e de magnetocricidade [27].

Primeiramente, investigamos a magnetização em cada uma das cinco redes diferentes a partir das medidas de MFM realizadas após o processo de desmagnetização. As análises foram feitas contando-se o número total de cargas magnéticas e a magnetização do sistema a partir da direção dos dipolos. Os dados obtidos das cinco redes diferentes pode ser visto na figura 5.5, com a magnetização  $M_y$  normalizada pelo número de ilhas em 5.5(a) e a porcentagem de carga magnética normalizada pelo número do vértice 5.5(b), ambas em função das separações lateral e longitudinal.

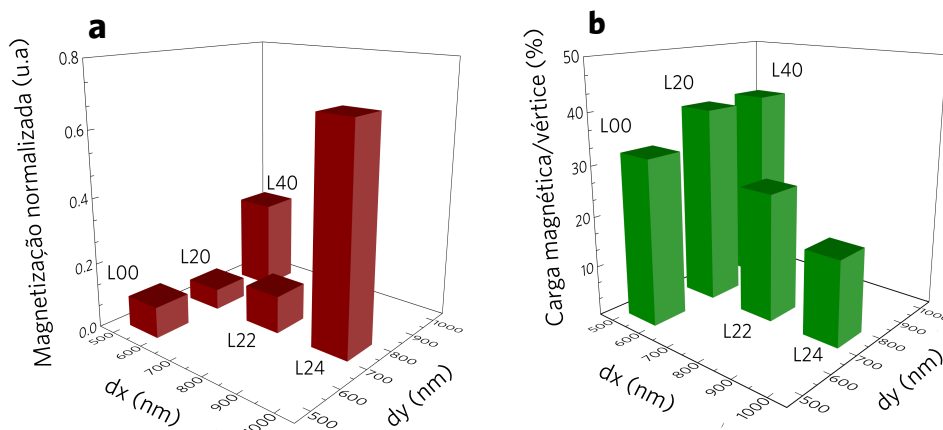


Figura 5.5: (a) Magnetização normalizada na direção  $y$  e (b) porcentagem da população de carga magnética dividida pelo número de vértices em função das separações longitudinal e lateral após o processo de desmagnetização.

As medidas expostas no gráfico 5.5 revelaram que a menor magnetização  $M_y \approx 0,064$  foi obtida na amostra L20, aumentando monotonicamente com a distância entre os nanomagnetos na direção  $x$ . No entanto, a análise da população de carga magnética, mostra que nesta amostra particular L20, juntamente com a L40, a população de cargas magnéticas estão mais presentes, implicando que a diminuição da magnetização ocorre quando os dipolos estão alinhados na configuração cabeça-cabeça ou cauda-cauda na direção longitudinal, condição para que ocorra a emergência de carga magnética de vértice, em vez de configuração antiferromagnética lateral como esperado para o estado fundamental previsto pelo modelo de Haltere [7]. Vale aqui destacar que obter a configuração de estado fundamental é uma tarefa experimental desafiadora, especialmente em sistemas frustrados. Nossas observações mostram que a rede que mais se aproxima da predição para o estado fundamental unidirecional é a L22, embora apresentem domínios ferromagnéticos que transportam cargas magnéticas em suas extremidades.

No segundo passo, investigamos a resposta dos nanomagnetos mediante ao campo magnético externo em função da separação longitudinal e lateral. Para isso, aplicamos campo na direção  $y$  a fim de saturar a magnetização, e a partir deste ponto, começamos a aplicar campo magnético na direção oposta. Para esta medida, foi necessário a realização de uma adaptação no equipamento de MFM com o intuito de se controlar o campo externo aplicado na amostra. Foi construído um eletroímã sobre um núcleo ferromagnético com 922 voltas em um espaçamento de 6 cm e calibrado pela corrente através de um gaussímetro. Não houve aplicação de campo durante a varredura do microscópio pois o conjunto de bobinas do circuito interno MFM poderia sofrer interferências pela aplicação do campo externo. Como a amostra é

atérmica, primeiramente o campo magnético foi aplicado, magnetizando a amostra, seguido da medida a campo nulo. A montagem do equipamento pode ser vista na figura 5.6.

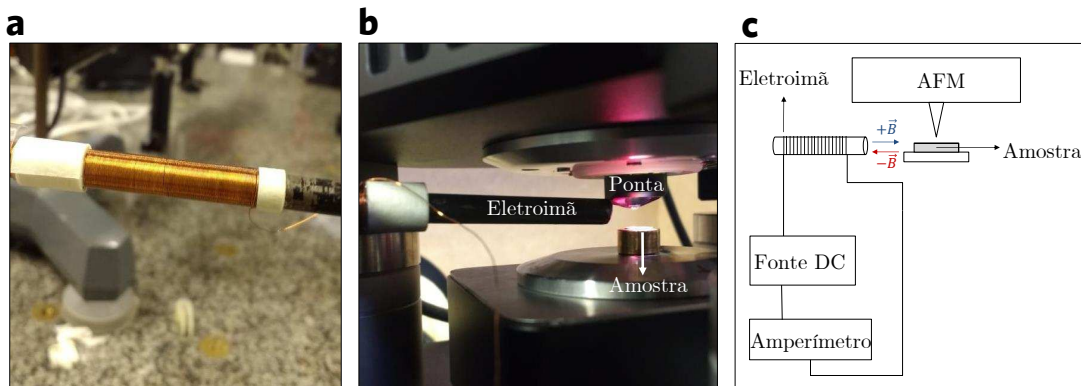


Figura 5.6: (a) Eletroímã finalizado com 922 voltas. O processo de calibração mostrou um campo efetivo de 10 Oe para cada  $i = 60$  mA de corrente aplicada. (b) Montagem do eletroímã junto ao MFM e (c) a representação esquemática de toda montagem do sistema.

Cada giro de magnetização do nanomagnetos é responsável pela criação de um par de carga magnética. A inversão de sucessivos nanomagnetos longitudinais vizinhos separará o par de cargas magnéticas opostas, criando uma corrente de carga magnética. Aumentando o campo magnético e promovendo separações dos pares, as cargas magnéticas opostas eventualmente se encontram e se aniquilam até que a saturação da magnetização para o lado oposto seja atingida. Apesar da carga magnética ser restrita a se mover na mesma direção longitudinal, a atração ou repulsão com cargas vizinhas laterais afeta sua mobilidade dependendo da distância entre as correntes. A combinação de interação dipolar entre nanomagnetos e cargas magnéticas resulta em aumento ou diminuição do campo magnético externo necessário para seu transporte. Conhecendo melhor o mecanismo de criação e transporte das cargas magnéticas, o ajuste nos parâmetros de rede  $a$  e  $b$  pode ser útil para otimizar a intensidade do campo necessária para o movimento e a população de carga magnética, permitindo que sistemas de baixo consumo de energia sejam usados na tecnologia para aplicação de campo magnético em dispositivos de memória [111]. O processo de medição está representado na figura 5.7, que é composta por imagens de MFM com varredura de  $40 \mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$  obtidas em estado intermediário de aplicação de campo magnético externo e um diagrama ilustrando o mapeamento de cargas magnéticas nas regiões destacadas. A curva de histerese com magnetização normalizada na direção  $y$ , obtida por contagem dos dipolos é mostrada na figura 5.7(b), enquanto a porcentagem de cargas magnéticas normalizada por número total de vértices é mostrada na figura 5.7(c).

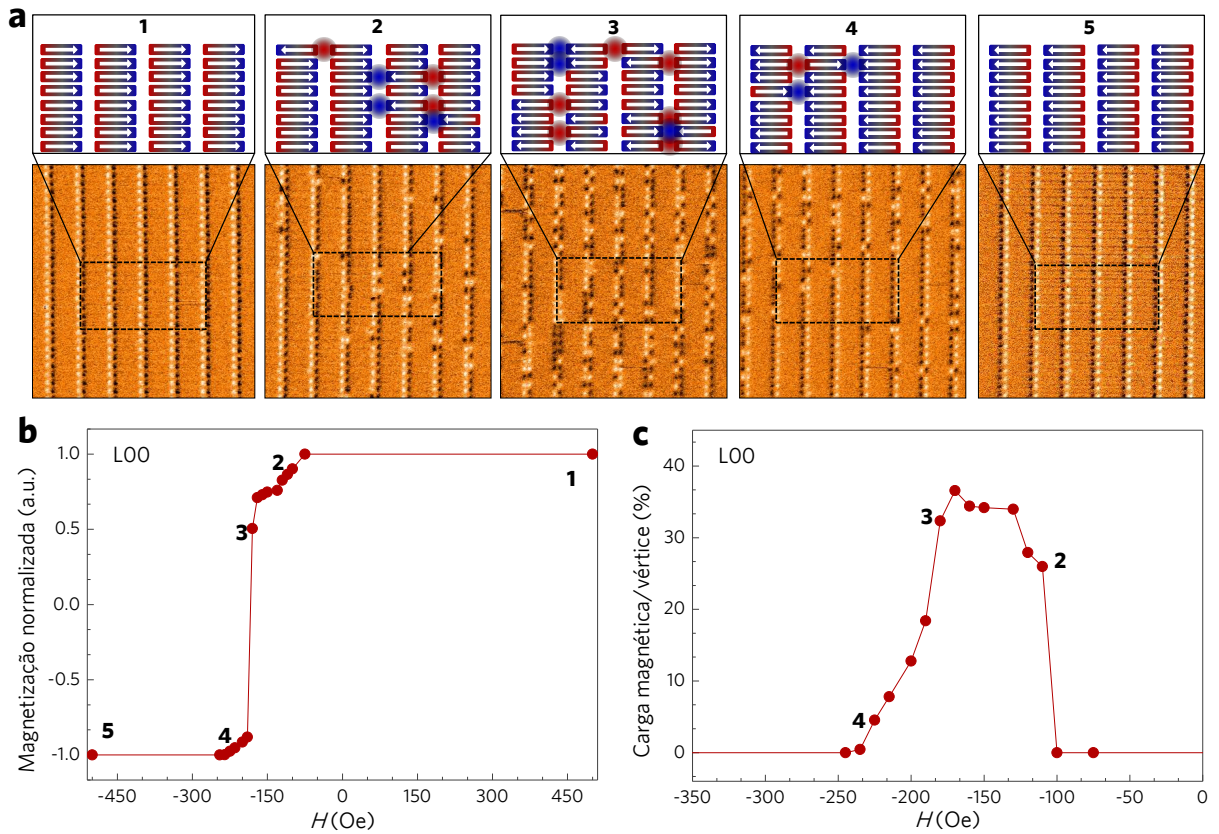


Figura 5.7: (a) Imagens de MFM da amostra L00, apresentando a magnetização dos dipolos e as cargas magnéticas em função da varredura do campo magnético externo. A parte destacada mostra a evolução da emergência das cargas magnéticas através de pontos azuis e vermelhos. (b) Histerese magnética obtida pela contagem da magnetização dos nanomagnetos. Os números 1-5 representam o campo magnético aplicado apresentadas na figura a. (c) População de carga magnética em função do campo magnético externo aplicado extraído da Figura a.

A histerese obtida para as cinco amostras está indicada na figura 5.8, com as amostras de rede laterais variáveis  $a$  na figura 5.8 (a), e as amostras com separação na direção  $b$  na figura 5.8 (b).

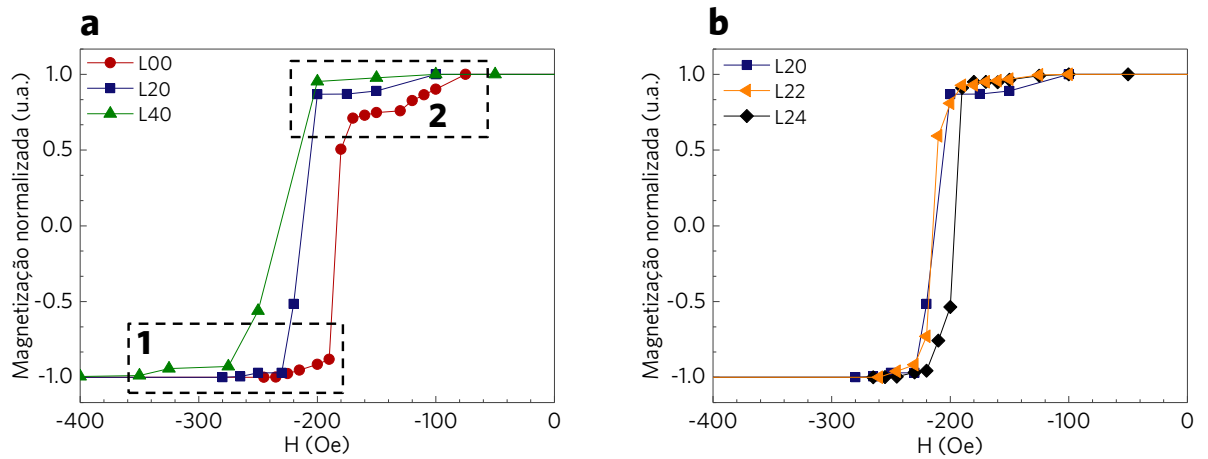


Figura 5.8: Histerese magnética para as amostras com (a) diferentes separações laterais e (b) diferentes separações longitudinais.

A primeira observação a respeito das histereses é que a coercividade é totalmente afetada pela separação lateral  $a$  entre os nanomagnetos, aumentando monotonicamente de  $H_c=185$  Oe para  $H_c=226$  Oe. Estes resultados mostram que, mesmo sem movimento de carga magnética entre as linhas separadas na direção  $x$ , o parâmetro de rede afeta a mobilidade da carga magnética alterando a interação dipolar carga-carga e entre dipolos. A magnetização começa a diminuir em intensidades de campos menores para a rede com separação lateral mais próxima entre os nanomagnetos devido ao alinhamento antiferromagnético preferencial promovido pela interação dipolar. Tal comportamento pode ser percebido na histerese (fig. 5.8), destacado e nomeado como região 1 e 2. A concordância entre teoria [112] e experimentos é observada pela similaridade no decaimento da inclinação do pescoço da região 1, apresentada na figura 5.9 (a), e o enfraquecimento da constante dipolar, como mostrado na figura 5.9 (b). Para as amostras com separação longitudinal  $b$ , a coercividade foi reduzida de  $H_c = 210$  Oe para  $H_c=196$  Oe entre as amostras L20 (de distância longitudinal menor) e L24 (de distância longitudinal maior). Esses resultados também concordaram com a previsão teórica, uma vez que mais energia do campo externo é necessário para girar cada dipolo e superar tanto a energia das cordas quanto a interação coulomb, que aumentam com a interação dipolar.

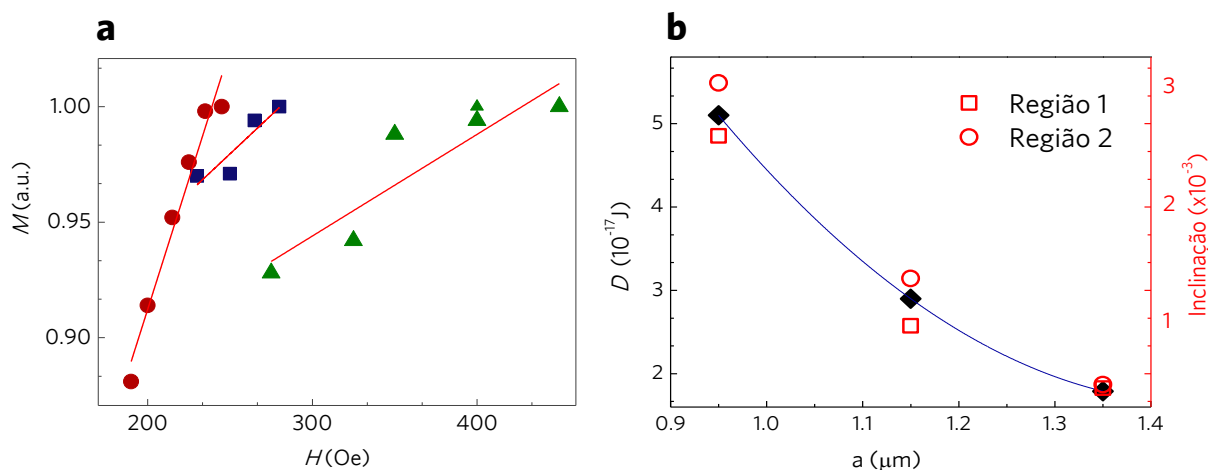


Figura 5.9: (a) Região 1 ampliada da figura 5.8 a mostrando a inclinação das três amostras L00, L20 e L40. (b) Inclinação das regiões 1 e 2 das regiões destacadas juntamente com a constante dipolar  $D$ .

A evolução da população de carga magnética das cinco amostras em função do campo externo pode ser vista na figura 5.10. Estes resultados mostram uma maior emergência de carga magnética nas redes com menor separação na direção lateral  $x$  em campos magnéticos baixos, e uma diminuição na população de carga magnética a medida em que se aumenta a separação lateral, com pico deslocado para campos magnéticos externos mais altos. Os resultados presente na figura 5.10 (b) mostram que a maior população de cargas magnéticas ocorrem na amostra L22, aquela com separação lateral e longitudinal intermediária. Como as amostras L20, L22 e L24 possuem separações na direção longitudinal  $y$ , a interação entre as cargas na direção lateral permanece a mesma, de modo que o campo necessário para criá-las permanece praticamente inalterado, e o pico não é deslocado como no caso anterior.

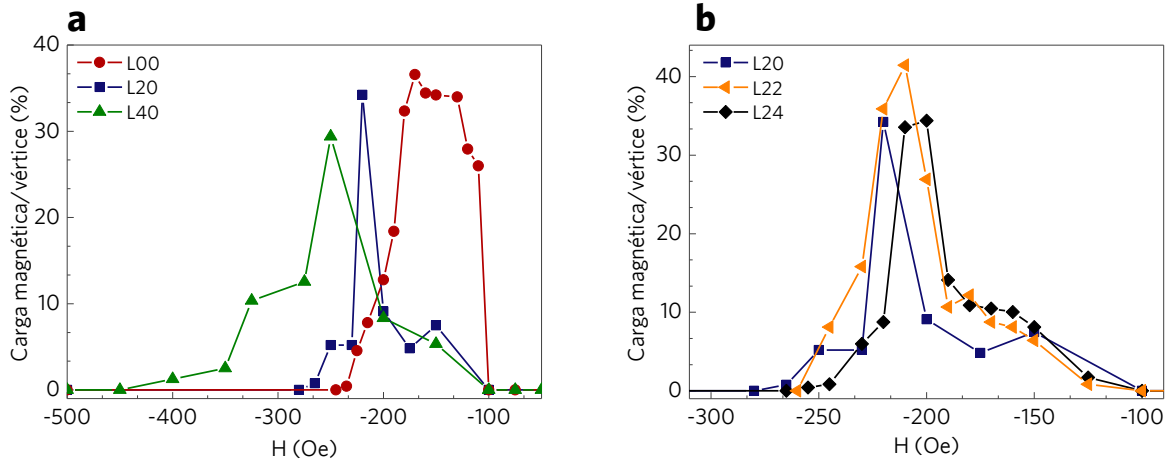


Figura 5.10: Percentual de carga magnética em função do campo aplicado externo para as amostras com (a) diferentes separações laterais ( $d_x$ ) e (b) diferentes separações longitudinais ( $d_y$ ).

O resumo dos valores obtidos para campo coercivo e porcentagem de população magnética para todas amostras investigadas estão indicados na tabela 5.3.

| Amostra | Hc (Oe) | População de carga mag. (%) |
|---------|---------|-----------------------------|
| L00     | 185     | 36,5                        |
| L40     | 226     | 29,4                        |
| L20     | 210     | 34,3                        |
| L22     | 215     | 41,6                        |
| L24     | 196     | 34,5                        |

Tabela 5.3: Campo coercivo e população de carga magnética para as cinco amostras investigadas.

Os resultados aqui obtidos concordam parcialmente com a previsão teórica de J.H. Rodrigues [112], que propuseram um modelo que incorpora o momento dipolar dos vértices para prever a população e a intensidade da carga magnética em função do campo externo. Rodrigues mostrou que a maior emergência da população de carga magnética ocorre para cargas de maior intensidade em campos magnéticos mais baixos e é deslocado para campos mais altos a medida em que a intensidade das cargas diminui, que é o oposto do observado no presente trabalho. Tal discrepância pode ser atribuída ao fato de que a análise teórica foi baseada considerando a tensão das cordas aproximadamente 10 vezes maior do que o previsto em nosso sistema [7]. Nas nossas observações experimentais, não apenas a intensidade da carga está mudando com o espaçamento entre as nanoilhas, mas também a energia das cordas, como observado em trabalhos anteriores com geometria similar [7]. Isso pode ser visto na figura 5.10 (a), onde a intensidade da carga magnética é a mesma em cada rede, mas a população de carga magnética é maior na rede de

menor separação lateral, provavelmente devido à redução na tensão das cordas pela influência dos vizinhos mais próximos. A partir desses resultados pode-se concluir que, enquanto a interação dipolar entre nanoilhas laterais afeta a eficiência da criação e aniquilação do monopolo magnético, a intensidade de carga influencia a porcentagem de população de monopolos magnéticos.

# 6 Resultados da válvula de spin supercondutora

## 6.1 O spin switch

O supercondutor utilizado nesta pesquisa foi o nitreto de nióbio (NbN), que em suas condições de otimização possui uma temperatura crítica de 16K [113]. NbN possui uma estrutura cristalográfica fcc tipo NaCl ( $a=0,44$  nm) (ver apêndice B), é um supercondutor tipo II com um comprimento de coerência  $\xi=5$ nm [114]. Para controle magnético da estrutura foi utilizado o GdN que é um isolante ferromagnético com temperatura de Curie  $T=60$  K [114] que também possui estrutura cristalográfica fcc ( $a=0,5$  nm) (ver apêndice B) que pode ser facilmente crescido por sputtering em temperaturas ambientes. O motivo da escolha destes materiais é a baixa temperatura de Curie do GdN que leva a uma diminuição da quebra dos pares de Cooper, baixo comprimento de coerência do NbN que preserva a SC mesmo em espessuras pequenas e uma possibilidade de observar o efeito de spin switch em temperaturas maiores devido a alta temperatura crítica do NbN.

As amostras de estrutura GdN/NbN/GdN foram crescidas sobre substratos de Si oxidados termicamente, com  $Al_2O_3$  (5nm) na base e  $Al_2O_3$  (10nm) no topo para proteção contra oxidação, por *sputtering* DC a uma temperatura de  $450^\circ C$  sem a quebra do vácuo (*in situ*). As camadas de NbN foram depositadas a partir de um alvo de Nb com pureza 99,95% em uma atmosfera de Ar e  $N_2$  em uma pressão de crescimento de 2,3 mTorr. Os filmes de GdN foram crescidos a partir de um alvo de Gd 99,9% a uma pressão de 2,8 mTorr. Todos os detalhes do crescimento para os dois materiais estão descritos na tabela 6.1.

Tabela 6.1: Condições para crescimento das amostras utilizando sistema sputtering.

| Propriedades               | NbN                 | GdN                 |
|----------------------------|---------------------|---------------------|
| Temperatura ( $^\circ C$ ) | 450                 | 450                 |
| Potência (W)               | 300(DC)             | 50(DC)              |
| Fluxo ( $cm^3/min$ )       | $40_{Ar}+9,5_{N_2}$ | $50_{Ar}+3,2_{N_2}$ |
| Porcentagem de $N_2$ (%)   | 19,2                | 6                   |
| Substrato                  | Si/SiO <sub>2</sub> | Si/SiO <sub>2</sub> |
| Pressão (mTorr)            | 2,3                 | 2,8                 |

A coercividade do filme de GdN (23 nm) foi determinada via SQUID (*Superconducting Quantum Interference Devices*) [115] a uma temperatura de  $T=5$  K, assim como a

temperatura de Curie. Ambos resultados estão destacados na figura 6.1.

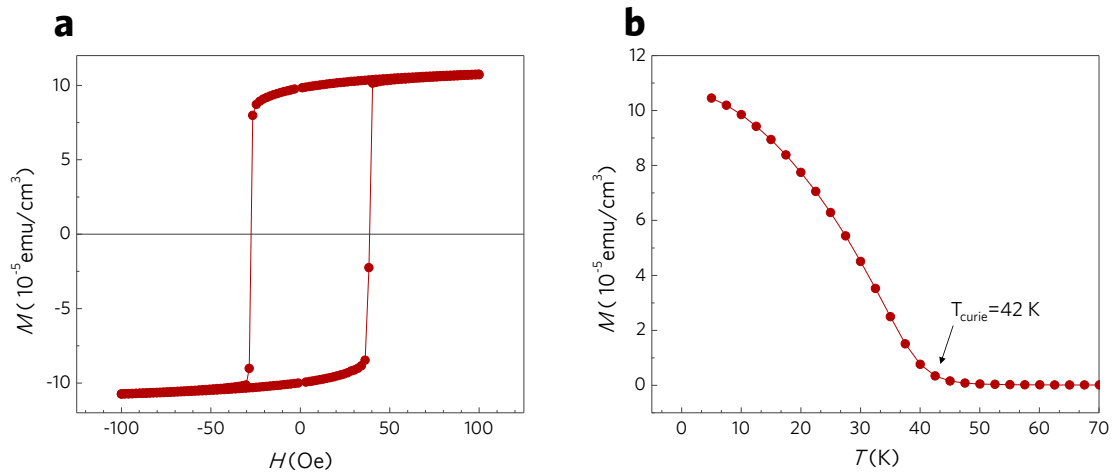


Figura 6.1: (a) Loop de histerese magnética a  $T=5$  K para um filme de GdN de 23 nm de espessura com coercividade  $H_c = 28$  Oe. (b) Magnetização em função da temperatura apontando a temperatura de Curie  $T_{Curie} = 42$  K.

A determinação da temperatura crítica do supercondutor foi realizada com a medida da resistência da amostra em função da temperatura através de uma sonda de quatro contatos em banho de hélio líquido. Uma série de amostras de espessuras diferentes foram analisadas com o objetivo de estabelecer a melhor temperatura de transição para filmes finos e para o *bulk*. A figura 6.2(a) mostra a resistência normalizada em função da temperatura em Kelvin para três filmes finos de NbN com espessuras 3, 4 e 5 nm. Escolhemos a amostra de 5nm para utilizar na tricamada pois esta apresenta a melhor relação entre a espessura e a temperatura crítica. A figura (b) mostra a temperatura crítica  $T_c = 12$  K para um filme espesso de 150nm.

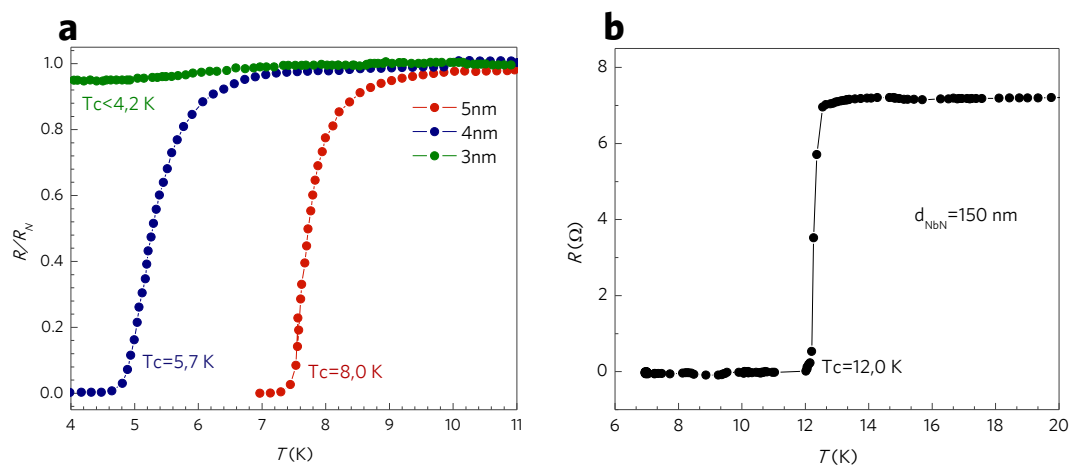


Figura 6.2: (a) Resistência normalizada em função da temperatura (K) para amostras de NbN com 3, 4 e 5 nm de espessura. (b) Resistência em função da temperatura para NbN de 150 nm.

A primeira estrutura analisada foi uma tricamada de configuração GdN 40nm/NbN 5nm/GdN 15nm. A curva da susceptibilidade desta estrutura é mostrada no gráfico 6.3, no qual é possível verificar dois picos em cada parte da curva, indicando dois campos coercivos referentes às espessuras 40 nm e 15 nm do material ferromagnético. Este valor de campo coercivo indica qual campo magnético deve ser aplicado para estabelecer os estados paralelo e anti-paralelo na válvula de spin.

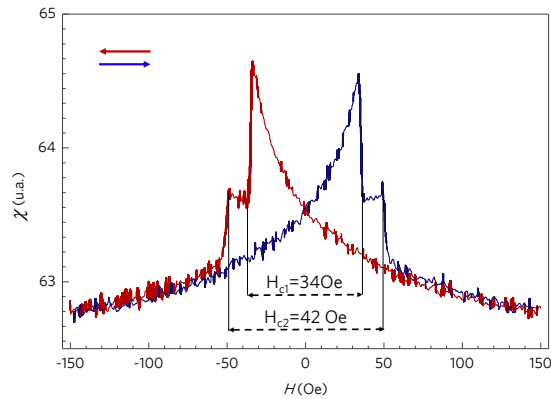


Figura 6.3: Susceptibilidade magnética em função do campo magnético em Oe para a tricamada GdN(40nm)/NbN(5nm)/GdN(15nm). Os dois picos maiores representam o campo coercivo  $H_{c1}$  da primeira camada de GdN (40 nm) e os picos menores representam o campo coercivo  $H_{c2}$  da camada mais fina de 15 nm .

A fim de se investigar o acoplamento das camadas ferromagnéticas através do supercondutor, as mesmas medidas de susceptibilidade foram realizadas para várias espessuras de NbN e mantendo as espessuras do ferromagneto GdN fixas em 40 nm e 15 nm. As curvas foram realizadas em uma temperatura de  $T=7,8$  K, e estão indicadas no gráfico 6.4

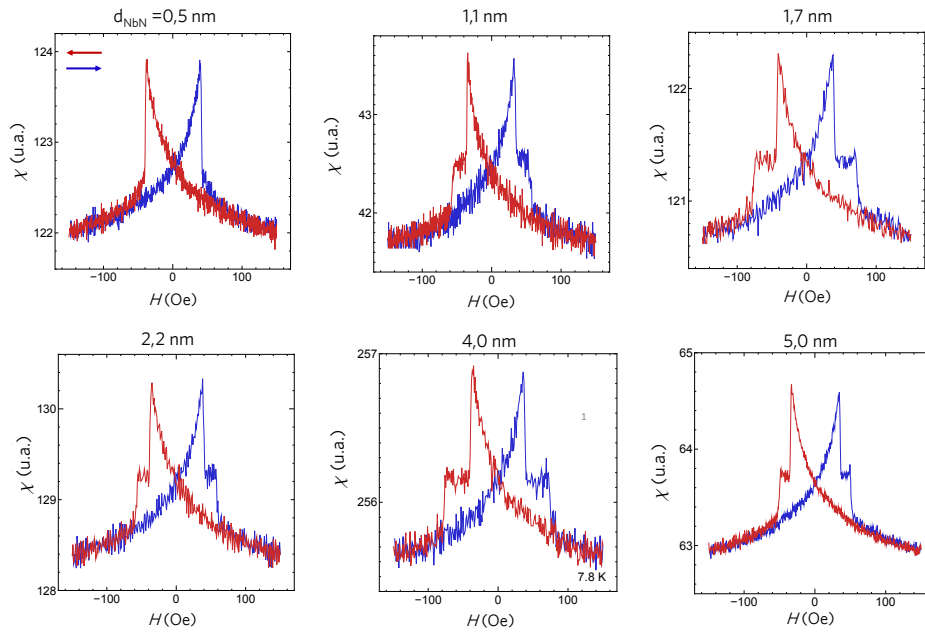


Figura 6.4: Susceptibilidade da tricamada em função do campo aplicado para várias espessuras.

Estes resultados mostram que o segundo pico, referente à coercividade da segunda camada FM, só aparece em  $d_{NbN} > 0,5$  nm. Para espessuras muito pequenas de NbN, o material ferromagnético se comporta como um único filme, e para espessuras maiores que 0,5 nm, a estrutura começa a apresentar um acoplamento ferromagnético, indicando que não só o supercondutor de  $d_{NbN} = 5$  nm pode ser utilizado válvula, mas também NbN com espessuras menores.

Tomando apenas a tricamada de  $d_{NbN} = 5$  nm e variando a temperatura, é possível mostrar que mesmo abaixo da temperatura crítica, as camadas ferromagnéticas continuam acopladas como mostra o gráfico 6.5.

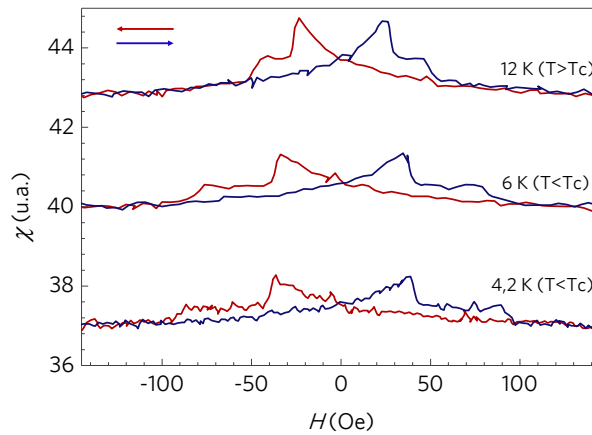


Figura 6.5: Suscetpibilidade da tricamada GdN(40nm)/NbN(5nm)/GdN(15nm) medida em três temperaturas de 12 K, 6 K e 4,2 K respectivamente.

Apesar do sinal ser mais ruidoso e menos intenso em  $T < 6$  K, é possível observar a existência do acoplamento entre as camadas ferromagnéticas. Este resultado vai contra o reportado por Blamire [116], que afirma que o acoplamento antiferromagnético desaparece em temperaturas abaixo de  $T_c$  em estruturas de GdN/NbN/GdN devido à perda da densidade de quasi-partículas no nível de Fermi causada pela formação dos pares de Cooper. Entretanto, o acoplamento mostrado pelo gráfico 6.5 indica que, apesar da perda da densidade de quasi-partículas, o espaçador NbN possui elétrons de condução suficiente para intermediar o acoplamento entre as camadas ferromagnéticas. A fração de elétrons que formam pares de Cooper em um supercondutor é da ordem de  $\Delta k/k_F \approx 10^{-4}$  [85]. Sabemos que a densidade de portadores livres presente no NbN é  $n_{NbN} = 1,3 \times 10^{30} e/m^3$  (valor obtido na seção 6.2), portanto  $n_s \approx 1,3 \times 10^{30} \cdot 10^{-4} \approx 1,3 \times 10^{26} e/m^3$ , que representa a densidade de pares formados no volume da amostra.

Outro fator interessante observado no gráfico 6.5 é que a coercividade do GdN é altamente modificada quando o NbN entra no estado supercondutor. Para entender melhor este efeito, medidas de magnetização em função do campo aplicado (M-H) foram feitas em três amostras de configuração GdN(5nm)/NbN(5nm), GdN(10nm)/NbN(5nm) e GdN(23nm)/NbN(5nm). Como mostra a figura 6.6, a coercividade da camada de GdN aumenta a medida em que a temperatura diminui.

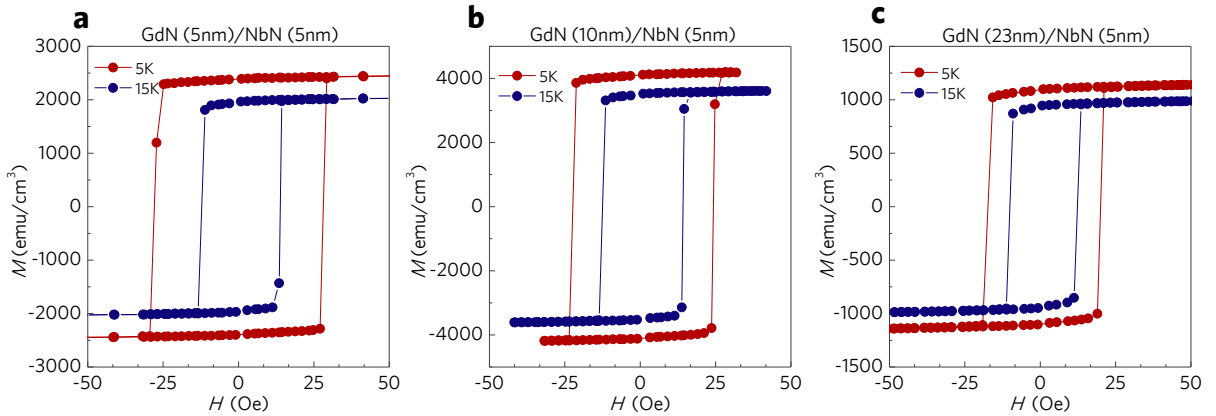


Figura 6.6: Loop de histerese magnética realizadas acima (curva em azul) e abaixo da temperatura crítica do NbN (curva em vermelho) para bicamadas de (a) GdN(5nm)/NbN(5nm), (b) GdN(10nm)/NbN(5nm) e (c) GdN(23nm)/NbN(5nm).

Isto implica que, a uma temperatura de  $T=5$  K quando o NbN se encontra no estado supercondutor, o campo necessário para girar a primeira camada ferromagnética, colocando a válvula na configuração AP, deve ser de 25 Oe, e para girar a segunda camada, o campo deve ser de pelo menos 56 Oe, como é mostrado na curva M-H (6.7) para a tricamada GdN(15nm)/NbN(5nm)/GdN(40nm).

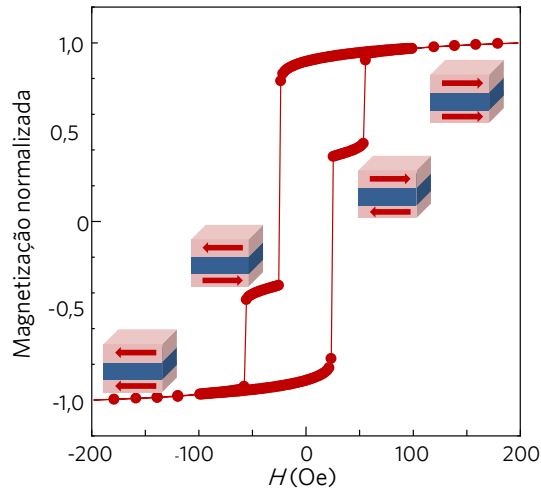


Figura 6.7: Magnetização em função do campo aplicado para a tricatada de estrutura GdN(15nm)/NbN(5nm)/GdN(40nm) indicando a controlabilidade da orientação da magnetização das camadas de GdN a uma temperatura de  $T=5$  K. Os degraus representam os campos coercivos das diferentes espessuras de GdN e indicam estados paralelo e anti-paralelos de magnetização entre as camadas ferromagnéticas.

Conhecendo o campo coercivo das camadas ferromagnéticas quando NbN encontra-se no estado supercondutor, o próximo passo foi verificar a influência dos estados P e AP sobre nossa estrutura. Para isto uma série de amostras GdN(15nm)/NbN(xnm)/GdN(40nm) foram submetidas a medidas de magnetorresistência a uma temperatura de 4,2 K (banho de hélio líquido). As medidas foram realizadas através de uma sonda de quatro contatos com a aplicação de corrente DC constante  $i_{DC}=10 \mu\text{A}$  em dois contatos, e a voltagem medida em outros dois, conforme está ilustrado na figura 6.8(a). A montagem real com a amostra conectada aos contatos na sonda está mostrada na figura (b).

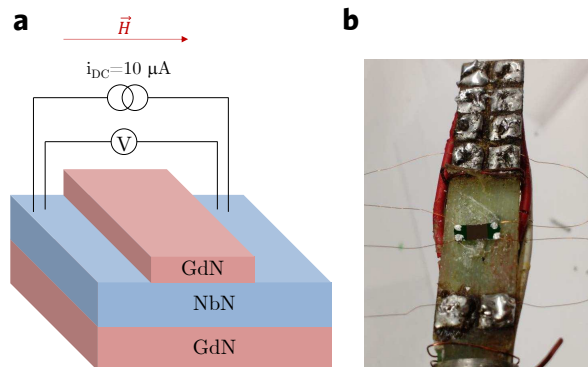


Figura 6.8: (a) Esquema de montagem da medida de transporte não-local na válvula de spin supercondutora. (b) Imagem real da amostra junto à sonda com os 4 contatos realizados com fio de cobre e índio.

A figura 6.9 mostra as medidas de magnetorresistência para a tricamada variando espessura de NbN e mantendo a temperatura constante  $T=4,2$  K.

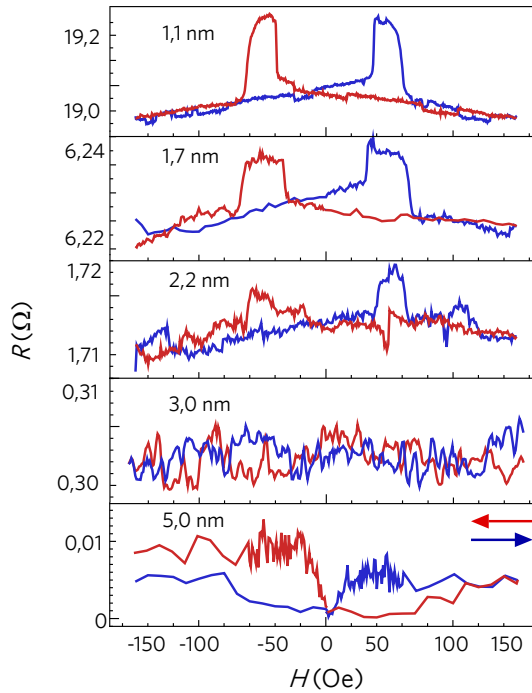


Figura 6.9: Magnetoresistência da tricamada em função do campo magnético aplicado para várias espessuras de NbN em  $T=4,2$  K.

Os resultados presentes na figura 6.9 mostram um comportamento magnetoresistivo típico de uma válvula de spin FM/MN/FM, no qual a resistência aumenta no estado antiparalelo. Ao contrário do esperado, a MR reduz com o aumento da espessura, o que também é típico de uma válvula de spin comum. Um resumo da MR das 5 medidas feitas em função da espessura  $d_{NbN}$  pode ser visto no gráfico 6.10.

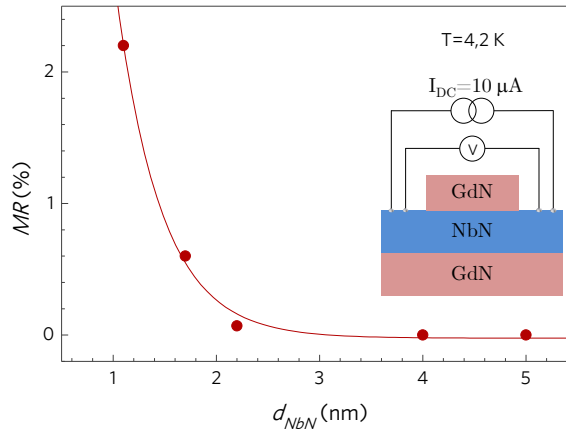


Figura 6.10: Magnetoresistência da tricatada em função da espessura  $d_{NbN}$ . A figura representa o diagrama de montagem para as medidas de MR com aplicação de corrente constante de  $10\mu A$  no plano do supercondutor.

Este comportamento sugere a presença de camada metálica ferromagnética nas interfaces GdN/NbN. Estas impurezas metálicas se ligam ferromagneticamente com camadas de GdN adjacentes prejudicando o *spin switch*. Interfaces não ideais podem aumentar as chances de hibridização entre o orbital 4d do Nb e 5d do Gd, que dão origem a interfaces ferromagnéticas [117]. Para acessar as camadas interfaciais GdN/NbN e entender melhor o motivo do sinal GMR, realizamos medidas de refletividade de nêutrons polarizados (PNR) na tricatada com um espaçador NbN de 5 nm de espessura, como pode ser vista na figura 6.11. As medidas foram feitas em duas temperaturas diferentes, 15 K onde NbN encontra-se estado normal, e 5 K onde NbN é supercondutor, com aplicação de 20 Oe (magnetização positiva), seguida da aplicação de -150 Oe e novamente aplicação de 20 Oe (magnetização negativa).

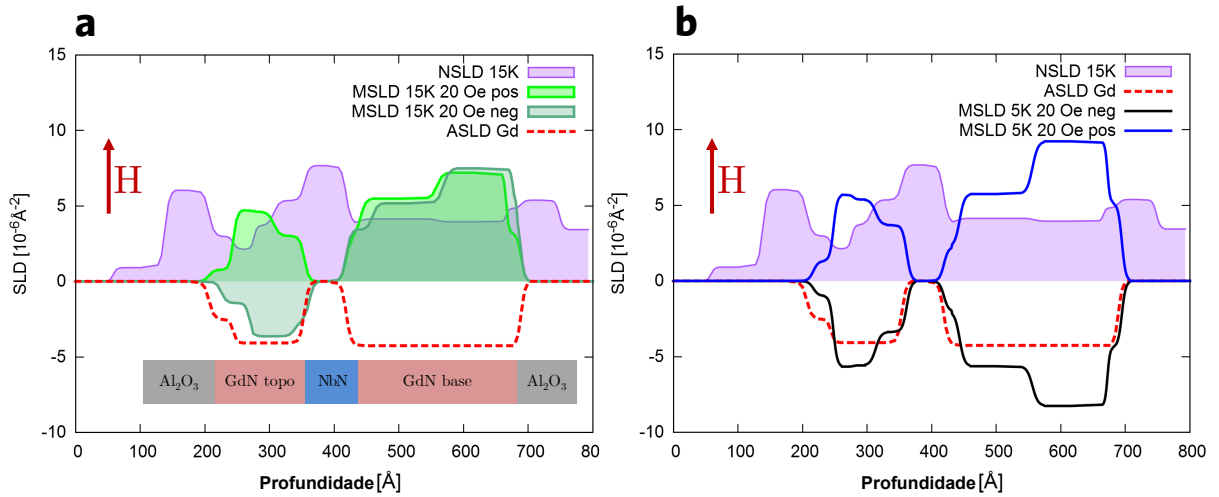


Figura 6.11: PNR da tricamada GdN(15nm)/NbN(5nm)/GdN(40nm) feita em uma temperatura de (a) 15 K e (b) 5 K. As medidas foram realizadas sob campo magnético de 20 Oe (marcada como pos), seguida da aplicação de -150 Oe e novamente aplicação de 20 Oe (marcada como neg). As medidas mostraram uma rugosidade de 0,58 nm

A figura 6.11 (a) mostra que o GdN do topo não é quimicamente uniforme na direção do crescimento (linha roxa) e que a interface perto de NbN é rica em nitrogênio. Além da maior parte da interface não estar bem definida, os momentos magnéticos deixam de existir exatamente na interface. A 15 K, após resfriamento sem aplicação de campo magnético, as duas camadas de GdN ficam no estado paralelo (linha verde claro), e após aplicação de -150 Oe e de 20 Oe novamente, passam a ficar no estado AP (linha verde escuro). A 5 K, na figura 6.11 (b), após resfriamento a campo nulo, as duas camadas de GdN ficam alinhadas ferromagneticamente na direção do campo (linha azul), e após aplicação de -150 Oe, seguida da aplicação de 20 Oe, as duas camadas ficam alinhadas paralelamente (linha preta), mas com direção oposta ao campo aplicado. Essas complexidades na interface explicam os resultados anteriores.

Com o intuito de melhorar a interface entre o supercondutor e o ferromagneto, algumas medidas foram tomadas. A primeira foi diminuir a temperatura do substrato para  $T_s=300^\circ\text{C}$  na hora do crescimento, e a segunda foi inserir uma camada de 0,3 nm de Gd entre as interfaces GdN/NbN, ambas com o intuito de diminuir a difusão dos átomos nas camadas na hora do crescimento. A boa qualidade da interface após estas modificações podem ser vista na figura 6.12(a), que representa a imagem de microscopia eletrônica de transmissão (TEM) da tricamada, seguida do esquema da estrutura final da válvula de spin na figura 6.12(b).

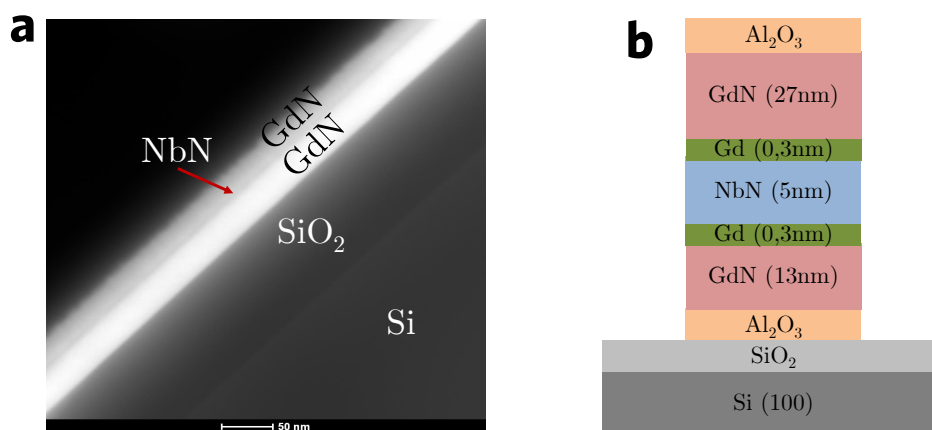


Figura 6.12: (a) Microscopia eletrônica de transmissão da válvula de spin supercondutora mostrando a boa definição da interface. (b) Esquema da estrutura final da válvula de spin supercondutora com a adição de 0,3 nm de Gd entre o GdN e o NbN.

Novas medidas de MR foram feitas após estas modificações e estão mostradas na figura 6.13. Tomando apenas a tricamada com  $T_s=300^\circ\text{C}$  sem Gd, foi possível observar uma melhora no sinal MR com a diminuição da resistência no estado AP, porém sem o efeito de *spin switch* completo, como pode ser visto na figura 6.13 (a). A inserção de uma pequena camada de Gd (0,3 nm) nas interfaces GdN/NbN provoca uma melhora drástica na válvula, com o efeito *spin switch* completo sendo observado na figura 6.13 (b).

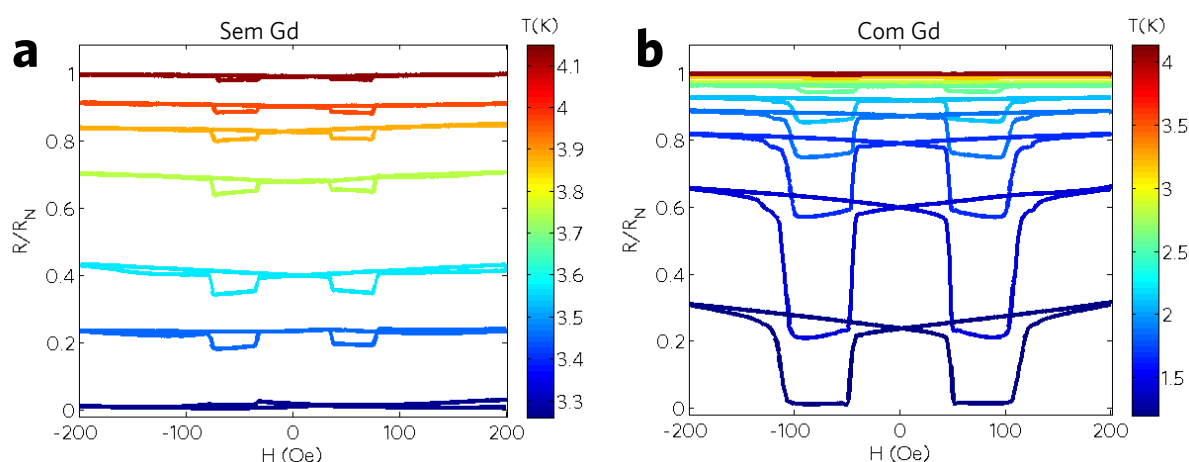


Figura 6.13: (a) Resistência normalizada da válvula de spin supercondutora crescida a  $300^\circ\text{C}$  em função do campo externo para várias faixas de temperatura indicada pela barra de cor lateral (a) sem Gd e (b) com 0,3 nm de Gd inserida nas interfaces GdN/NbN.

As medidas presentes na figura 6.13 foram realizadas em um criostato cuja temperatura alcança 1 K, e como pode ser visto, são extremamente sensíveis a uma faixa bem pequena de temperatura,

como previsto anteriormente [62].

Outra informação obtida foi a influência da configuração P e AP na transição supercondutora através da variação da temperatura crítica  $\Delta T_c = T_c^{AP} - T_c^P$ . Quando o SSE é observado, a válvula apresenta duas temperaturas críticas diferentes, dependendo da configuração de magnetização. Como é mostrado na figura 6.14, o intervalo de temperatura entre P e AP aumentou de 0,5 mK para 35 mK através da inserção de camadas Gd. Porém a introdução de Gd na estrutura diminui a temperatura crítica do SC, fazendo com que o SSE só ocorra em uma temperatura próximo de 1 K.

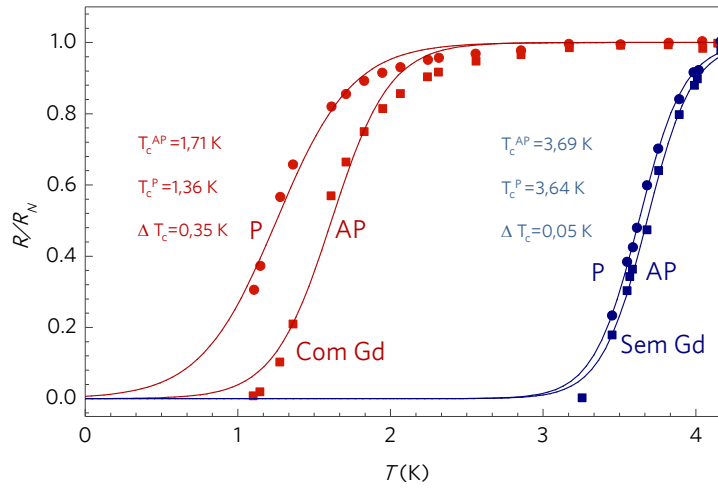


Figura 6.14: Variação da temperatura crítica do supercondutor em função da configuração AP e P das camadas ferromagnéticas. A curva vermelha representa a estrutura com a inserção de 0,3 nm de Gd cuja variação  $\Delta T_c = 35$  mK. A curva azul mostra a variação da temperatura para estrutura sem Gd com  $\Delta T_c = 0,5$  mK.

## 6.2 Análise quantitativa

Esta parte dos resultados estará focada na obtenção de alguns parâmetros supercondutores como comprimento de coerência  $\xi$ , comprimento de penetração  $\lambda$ , gap  $\Delta(0)$  supercondutor, campo crítico superior  $B_{c2}$  e outros. O conhecimento destes valores ajudam a entender melhor o sistema investigado e podem ser úteis na construção de novas válvulas de spin supercondutoras utilizando outros materiais.

### 6.2.1 Campo crítico Superior

Geralmente, a aplicação de campo magnético em supercondutores tipo II induz a quebra dos pares de pelo menos duas maneiras diferentes. O campo magnético pode primei-

ramente causar efeitos orbitais, que está relacionado com o surgimento de linhas de vórtice de Abrikosov e correntes supercondutoras em torno de núcleos de vórtices, que reduzem a energia de condensação.  $B_{c2}$  é o campo que provoca sobreposição dos núcleos dos vórtices, levando o supercondutor para o estado normal. O outro efeito é o spin-paramagnético, que tem sua origem na divisão Zeeman do spin singleto dos pares, induzindo a quebra da simetria de reversão temporal. O campo limite de Pauli  $B_{cP}$ , como é chamado, é derivado da condição que a energia Zeeman no estado normal compensa a energia de condensação supercondutora sob aplicação de campos magnéticos.

O gráfico 6.15(a) mostra a resistência normalizada da tricamada em função da temperatura crítica  $T_c$  para alguns valores de campo magnético aplicado ao longo do plano da amostra. A variação do campo crítico superior  $B_{c2}$  em função das temperaturas críticas obtidas, estão mostradas em 6.15(b).

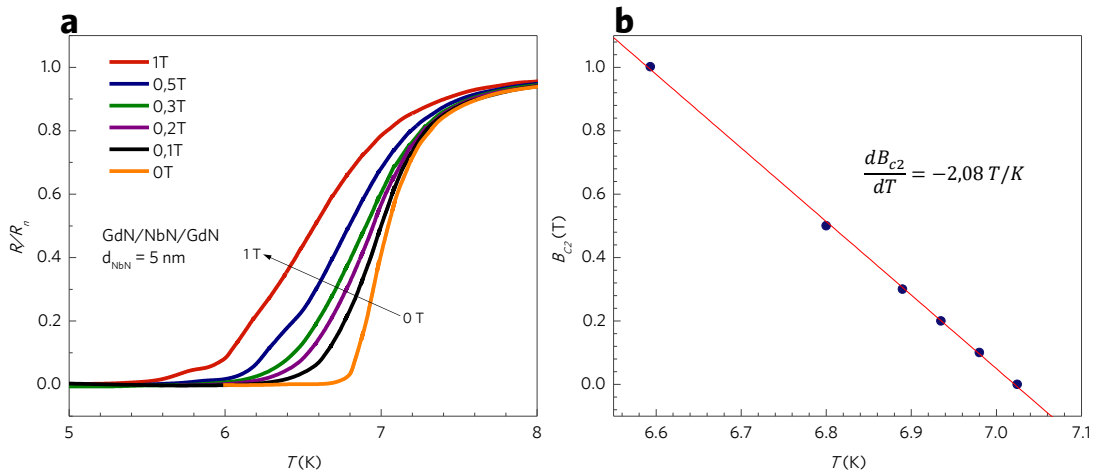


Figura 6.15: a) Resistência normalizada da tricamada GdN(13nm)/NbN(5nm)/GdN(27nm) em função da temperatura crítica quando submetida à campos magnéticos de valores que vão de 0T a 1T. b) Campo crítico  $B_{c2}$  em função da temperatura crítica  $T_c$  para mesma amostra. A linha contínua representa o ajuste linear.

Como nosso filme se encontra no limite sujo ( $\ell \ll \xi$ ), pela relação [80]

$$B_{c2}(0) = 0.69T_c \left. \frac{dB_{c2}}{dT} \right|_{T=T_c} \quad (6.1)$$

é possível estimar o valor de  $B_{c2}(0)$  extraindo a inclinação  $\frac{dB_{c2}}{dT}$  em  $T = T_c$ . Tomando  $T_c(B = 0) = 7,04 K$  do gráfico 6.15, conseqüentemente  $B_{c2}(0)=10,10 T$ , que representa o campo necessário para destruir a supercondutividade da válvula de spin supercondutora ( $GdN_{13nm}/NbN_{5nm}/GdN_{27nm}$ ). Dado o valor do campo crítico superior obtido, é possível esti-

mar comprimento de coerência  $\xi_{GL}$ , pela teoria de Ginzburg Landau [59]

$$\xi_{GL} = \sqrt{\frac{\phi_0}{2\pi B_{c2}}}, \quad (6.2)$$

em que  $\phi_0 = h/2e = 2,067 \times 10^{-15} \text{ Wb}$  é fluxo magnético quântico. Em boa concordância com a literatura [114], NbN possui  $\xi_{GL} = 5,7 \text{ nm}$ .

O parâmetro  $\alpha$  de Maki, já abordado na seção 3.10, pode ser estimado por dois métodos. Vale ainda citar que, se um material é coberto pela teoria WHH, então o resultado dado pelos métodos a seguir devem ser consistentes [118]. No primeiro caso, o parâmetro pode ser obtido via campo paramagnético de Pauli  $B_{cP}$  através da relação 3.116, ou seja

$$\alpha = \frac{\sqrt{2}B_{c2}(0)}{B_{cP}(0)}. \quad (6.3)$$

Considerando a temperatura crítica para o filme de 5 nm de NbN como  $T_c = 8 \text{ K}$ , o campo limite de Pauli fica  $B_{cP} = 1,841T_c = 14,728 \text{ T}$ , de modo que o valor do parâmetro encontrado é  $\alpha = 0,97$ . No segundo método, o parâmetro pode ser estimado utilizando a inclinação  $dB_{c2}/dT = -2,08 \text{ T/K}$  da curva 6.15 através da equação

$$\alpha = 0,532 \left( \frac{-dB_{c2}}{dT} \right)_{T=T_c}. \quad (6.4)$$

Substituindo os valores acima, o parâmetro obtido é  $\alpha = 1,10$ , indicando que nossa estrutura pode ser descrita pela teoria WHH.

Quando o material mantém o estado supercondutor sob altos valores de campo magnético ( geralmente acima de 2 T), a energia paramagnética dos spins passa a ser uma parte significativa da energia total da supercondutividade, e portanto, deve ser levada em consideração. Dentro desta abordagem, é possível extrapolar os dados experimentais da curva 6.15 em termos do parâmetro  $\alpha$ . O ajuste pode ser feito através da função [119]

$$h_{fit}^*(t) = 1 - t - C1(1 - t)^2 - C2(1 - t)^4, \quad (6.5)$$

com  $C1 = 0,153$ ,  $C2 = 0,152$  e  $t = T/T_c$ . Os valores de  $C1$  e  $C2$  foram encontrados pelos autores [119] como uma boa aproximação da teoria WHH no limite sujo ( $\xi_0 \gg \ell$ ). Utilizando a equação 6.5, o campo crítico superior fica

$$B_{c2}(T) = \frac{B_{c2}(0)}{0,693} h_{fit}^*(t), \quad (6.6)$$

no qual  $B_{c2}(0)$  e  $T_c$  foram utilizados como parâmetros de ajuste para obter as curvas da figura

6.16.

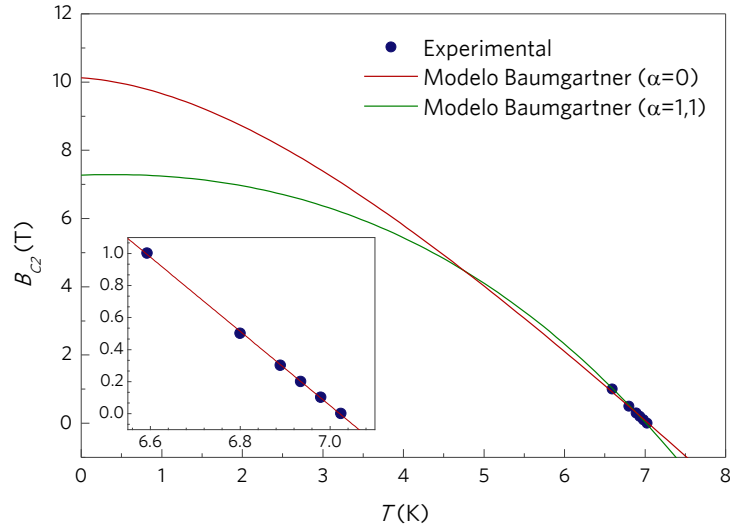


Figura 6.16: Dependência do campo crítico superior com a temperatura do NbN considerando os valores de  $\alpha = 0$  (ajuste em vermelho) e  $\alpha = 1, 1$  (ajuste em verde) no modelo de Baumgartner. O gráfico de dentro mostra um zoom dos dados obtidos cujo comportamento é linear.

A equação (6.1) da teoria WHH fornece o campo crítico superior desconsiderando o spin paramagnético de Pauli ( $\alpha = 0$ ), como é mostrado na figura 6.16 com o ajuste na cor vermelha. Neste regime, o valor de  $B_{c2}(\alpha = 0) = 10,1$  T, como já vimos. Considerando o spin paramagnético de Pauli, o campo crítico superior é dado por [118, 120].

$$B_{c2}(\alpha \neq 0) = \frac{B_{c2}(0)(\alpha = 0)}{(1 + \alpha)^{1/2}}, \quad (6.7)$$

que utilizando o valor de  $\alpha = 1, 1$  estimado anteriormente, leva a  $B_{c2}(\alpha = 1, 1) = 7,25$  T, como é mostrado no ajuste em verde do gráfico 6.16.

O parâmetro de Maki também pode ser utilizado para calcular o coeficiente eletrônico do calor específico [121, 118] através da relação

$$\alpha = 2, 35 \rho_n \gamma. \quad (6.8)$$

A resistividade do NbN no estado normal  $\rho_n = 273 \mu\Omega \cdot cm$  foi obtida experimentalmente através do método de quatro pontas de van der Pauw [122, 123]. A montagem da amostra com os quatro contatos utilizados na extração desta informação está presente na figura 6.17.

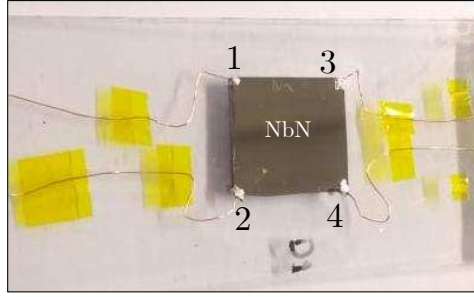


Figura 6.17: Contato de quatro pontas feita com índio em um filme de NbN com dimensões  $1,5 \times 1,5$  cm para obtenção da resistividade no estado normal ( $T=300$  K).

Estes valores levam ao coeficiente do calor específico  $\gamma = 1,55 \times 10^3 \text{ erg/cm}^3 \cdot \text{K}^2$ . Como veremos na sequência, o conhecimento dos valores de  $\rho_n$  e  $\gamma$  são importantes no tratamento de materiais supercondutores pois podem ser utilizados na determinação de vários outros parâmetros relevantes ao sistema investigado. O coeficiente de Ginzburg-Landau  $k$  pode ser obtido por [118]

$$k = 7,5 \times 10^3 \rho_n \sqrt{\gamma}, \quad (6.9)$$

que leva ao valor de  $k = 80,6$ . Este resultado pode ser utilizado para calcular o comprimento de penetração  $\lambda = k \cdot \xi_{GL} = 460 \text{ nm}$ , que é o esperado para um filme da ordem de  $5 \text{ nm}$  [124, 125]. Nesta altura da discussão, é possível ainda utilizar os valores de  $\rho_n$  e  $\gamma$  e estimar, de outra maneira [118], o valor do campo crítico superior  $B_{c2}(0)$ , isto é

$$B_{c2}(0) = 3,1 \rho_n \gamma T_c, \quad (6.10)$$

que fornece o valor de  $B_{c2}(0) = 10,4 \text{ T}$ , bem consistente com o encontrado anteriormente.

O campo crítico termodinâmico  $B_c$  pode ser encontrado através de dois métodos. O primeiro é dado pela relação de Ginzburg-Landau  $B_c = k\sqrt{2}B_c$ , já abordada na seção 3.7, e fornece o valor de  $B_c = 0,088 \text{ T}$ . No segundo método,  $B_c$  pode ser estimado utilizando  $\gamma$  através da relação [118, 126]

$$B_c = 2,42 T_c \sqrt{\gamma}, \quad (6.11)$$

isto é,  $B_c = 0,076 \text{ T}$ . Considerando os dois resultados obtidos respectivamente, é possível estimar a energia de condensação pela equação (3.12)  $E_{cond} = B_c^2/2\mu_0$ , de modo que o valor encontra-se entre  $2,3$  e  $3,1 \text{ KJ/m}^3$ , que equivale a  $0,21$  e  $0,28 \text{ } \mu\text{eV}/\text{átomo}$  ao considerar o parâmetro de rede do NbN como  $a = 0,44 \text{ nm}$  [114]. Ainda no âmbito da termodinâmica supercondutora, é possível calcular o valor do salto na descontinuidade do calor específico através

da equação 3.26 presente na seção 3.4, isto é

$$c_S - c_N = \frac{2B_c^2}{\mu_0 T_c}. \quad (6.12)$$

Sabendo que o campo termodinâmico vale  $B_c = 0,088 T$ , o valor encontrado é de  $c_S - c_N = 1540$  J/K.

No limite sujo, o campo crítico superior se relaciona com a densidade de estados no nível de Fermi  $D(E_F)$  através da relação [88, 127]

$$D(E_F) = \frac{\pi B_{c2}(0)}{0,69 T_c 4 e k_B \rho_n}, \quad (6.13)$$

em que  $e$  é o valor da carga elementar,  $k_B$  a constante de Boltzman. Sabendo que  $\rho_n = 273 \mu\Omega \text{ cm}$ , o valor encontrado é  $D(E_F) = 3,8 \times 10^{28}$  estados/ $m^3 eV$ , como esperado para um filme fino de NbN [118].

Conhecendo  $D(E_F)$ , é possível calcular, a partir do modelo de elétrons livres [9], as propriedades eletrônicas do NbN, como vetor de onda de Fermi  $k_F = D(E_F) \hbar^2 \pi^2 / m_e$ , a velocidade de Fermi  $v_F = \hbar k_F / m_e$  e a densidade de portadores  $n = k_F^3 / 3\pi^2$ , no qual  $m_e$  é a massa do elétron. Os valores obtidos estão presentes na tabela 6.2.1.

| $D(E_F)$ (estados/ $m^3 eV$ ) | $k_F$ ( $m^{-1}$ )    | $v_F$ (m/s)       | $n$ ( $e/m^3$ )      |
|-------------------------------|-----------------------|-------------------|----------------------|
| $3,81 \times 10^{28}$         | $2,84 \times 10^{10}$ | $3,2 \times 10^6$ | $1,3 \times 10^{30}$ |

Tabela 6.2: Densidade de estados no nível de Fermi  $D(E_F)$ , vetor de onda de Fermi  $k_F$ , velocidade de Fermi  $v_F$  e densidade de portadores  $n$  para amostra de NbN com espessura 5nm.

### 6.2.2 Constante de difusão

É possível estimar o coeficiente de difusão  $D$  para o NbN(5nm) através da expansão da equação de Maki-de Gennes [128, 79, 129] e tomando sua derivada quando  $T \rightarrow T_c$ , que leva a

$$D = -\frac{4\phi_0 k_B}{\pi^2 \hbar} \left( \frac{dB_{c2}}{dT} \right)_{T=T_c}^{-1}. \quad (6.14)$$

Utilizando o valor da inclinação  $dB_{c2}/dT = -2,08 T/K$  da curva 6.15, o coeficiente de difusão fica  $D = 0,53 \text{ cm}^2/s$  como esperado [130, 131].

### 6.2.3 Livre caminho médio

Tomando uma série de amostras de NbN com espessuras diferentes e fixando as espessuras adjacentes de GdN em 13nm e 27nm, é possível estabelecer o comportamento da temperatura crítica em função de  $d_{NbN}$  ajustando os dados experimentais pela relação [114, 116, 132]

$$T_c = T_{c0} \left( 1 - \frac{0,85^2 \xi_0 \ell \pi^2}{d_{NbN}^2} \right), \quad (6.15)$$

em que  $T_{c0}$  é a temperatura crítica para o filme espesso de NbN ( $T_c^{bulk}$ ),  $\xi_0$  o comprimento de coerência e  $\ell$  o livre caminho médio dos pares no supercondutor. O gráfico 6.18 mostra a variação da temperatura de transição do NbN na estrutura de válvula a medida em que a espessura da amostra aumenta.

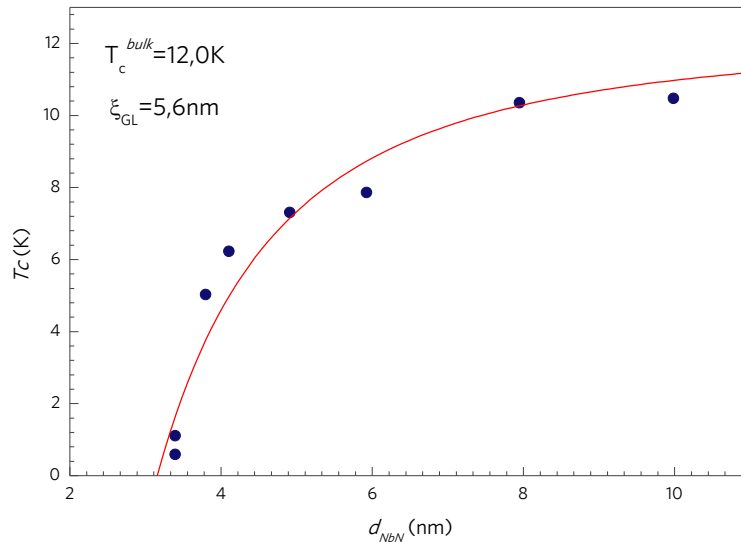


Figura 6.18: Variação da temperatura crítica em função da espessura do NbN na estrutura de válvula. A linha contínua é o ajuste da relação 6.15 fixando  $\xi_0 = 5,7 \text{ nm}$  e  $T_{c0} = 12 \text{ K}$ .

Fixando  $\xi_0 = 5,7 \text{ nm}$  e  $T_{c0} = 12 \text{ K}$ , o ajuste leva a um livre caminho médio de  $\ell = 0,21 \text{ nm}$ , como previsto em [133, 134]. Este resultado mostra que abaixo de 3,5nm, a temperatura crítica é praticamente zero devido ao campo de troca sentido pelos pares através da camada ferromagnética, ocasionando uma destruição da supercondutividade. Porém, com o aumento da espessura da camada supercondutora, o efeito destrutivo do ferromagnetismo sobre a supercondutividade vai perdendo força devido ao desacoplamento entre as camadas ferromagnéticas, de modo que a temperatura crítica  $T_c > d_{NbN=5nm}$  tende a se estabilizar em um valor próximo a 10 K.

### 6.2.4 Gap supercondutor

A partir de alguns parâmetros já obtidos até aqui, é possível fazer uma estimativa do gap supercondutor  $\Delta(0)$  utilizando pelo menos dois métodos. Primeiramente, pela teoria BCS, o gap é dado por

$$\Delta(0) = 1,764k_B T_c, \quad (6.16)$$

no qual  $k_B$  é a constante de Boltzmann. O valor de  $\Delta(0) = 1,21 \text{ meV}$  foi obtido considerando  $T_c = 8 \text{ K}$  para amostra de 5 nm de espessura. No segundo método, o gap pode ser obtido considerando o limite paramagnético de Pauli dado pela equação 3.114, isto é

$$B_{cP} = \frac{\Delta(0)}{\mu_B \sqrt{2}} = 1,841 T_c, \quad (6.17)$$

com o valor de  $\Delta(0) = 1,20 \text{ meV}$ , que está dentro do esperado para uma amostra com temperatura crítica de 8K [124], mostrando nossa análise utilizando dados extraídos do campo paramagnético de Pauli estão consistentes e descrevem de maneira satisfatória nossa estrutura.

### 6.2.5 Constante de troca

Uma forma de se entender efeito de *spin switch* observado em nossa estrutura pode ser feito analisando, de forma quantitativa, o campo de troca sentido pelo supercondutor na tricamada. Quando a válvula de spin encontra-se na configuração paralela, a constante de troca é dada por [6]

$$\Gamma S = k_B T_{c0} \frac{d_s}{2a}. \quad (6.18)$$

em que  $a$  é o parâmetro de rede,  $d_s$  a espessura do supercondutor na válvula e  $T_{c0}$  a temperatura crítica do bulk do NbN. O valor encontrado é  $\Gamma S = 8,2 \text{ meV}$ . Substituindo este valor na equação 3.120 do campo de troca médio de de Gennes [6], isto é,

$$\bar{h}(0) = 2|\Gamma|S \left( \frac{a}{d_s} \right) \cos \left( \frac{\theta}{2} \right), \quad (6.19)$$

temos  $\bar{h}(0) = 2,1 \text{ meV}$ , que é aproximadamente o dobro do gap  $\Delta(0) = 1,20 \text{ meV}$ , indicando que nossa estrutura se encontra na condição de forte campo de troca. Desta forma, fica evidente que próximo da temperatura crítica, o campo de troca sentido pelo supercondutor na configuração paralela provocará a transição para o estado normal e o *spin switch* será observado.

## 7 Conclusão geral e perspectivas

### 7.1 Gelo de spin unidirecional

O estado fundamental de orientação antiferromagnética entre as nanoilhas não foi observado após o protocolo de desmagnetização em nenhuma das redes investigadas, que pode ser atribuído à interação dipolar entre primeiros vizinhos. Extrapolações de nossos resultados podem apontar para tal configuração com distâncias lateral e longitudinal ainda menores entre os nanomagnetos.

A rede com maior número de cargas magnéticas foi a L22, que também apresentou maior mobilidade sob campo magnético externo. Assim, concluímos que esta geometria deve apresentar menor tensão nas cordas entre as cargas magnéticas. O valor do campo de saturação de nossas amostras é da ordem dos utilizados em bit lines de dispositivos de memória [135] e a mobilidade da carga magnética pode ser ajustada alterando as distâncias laterais entre as nanoilhas, abrindo possibilidades para futuras investigações em tais tipos de dispositivos.

Uma nova proposta, já em andamento, consiste em analisar o efeito de proximidade em redes de gelos de spin. Para isto, foram depositado 25nm de Al sobre todas as redes aqui investigadas a fim de cobrir todas as nanoilhas e conectá-las através do metal condutor. As amostras foram novamente analisadas e os resultados mostraram, com exceção da rede L20, um aumento na coercividade além de um deslocamento na emergência da população de monopolos deslocada para campos maiores. As amostras com separação lateral  $a$  podem ser vista na figura 7.1.

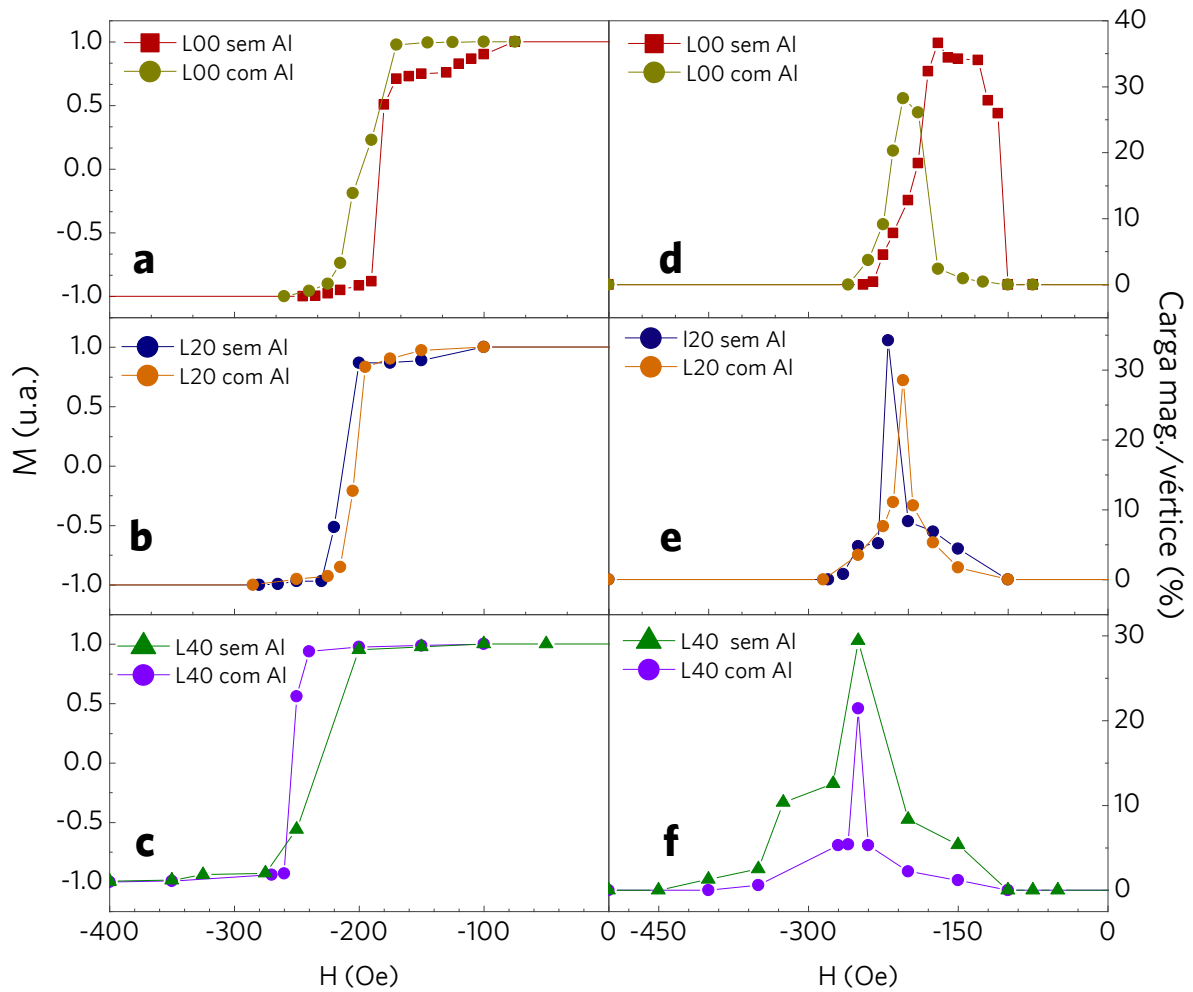


Figura 7.1: Histerese magnética comparando as redes (a) L00, (b) L20 e (c) L40 sem e com alumínio depositado. (c), (d) e (e) mostram a população de monopolos para as mesmas redes comparando a diferença entre as amostras sem e com alumínio.

Como todas as nanoilhas estão interligadas, as cargas magnéticas que surgem nos vértices não interagem apenas pela interação dipolar, mas também com o mar de elétrons do alumínio. Os resultados sugerem uma espécie de blindagem das cargas magnéticas causada pelos elétrons, o que explicaria o aumento da coercividade e o deslocamento da população de monopolos para campos mais elevados. Uma vez que a interação dipolar entre as cargas diminui, mais campo é necessário para inverter a magnetização das nanoilhas e conseqüentemente criar cargas magnéticas. As curvas de histerese e população de monopolos para as redes com separação longitudinal  $b$  estão mostradas na figura 7.2.

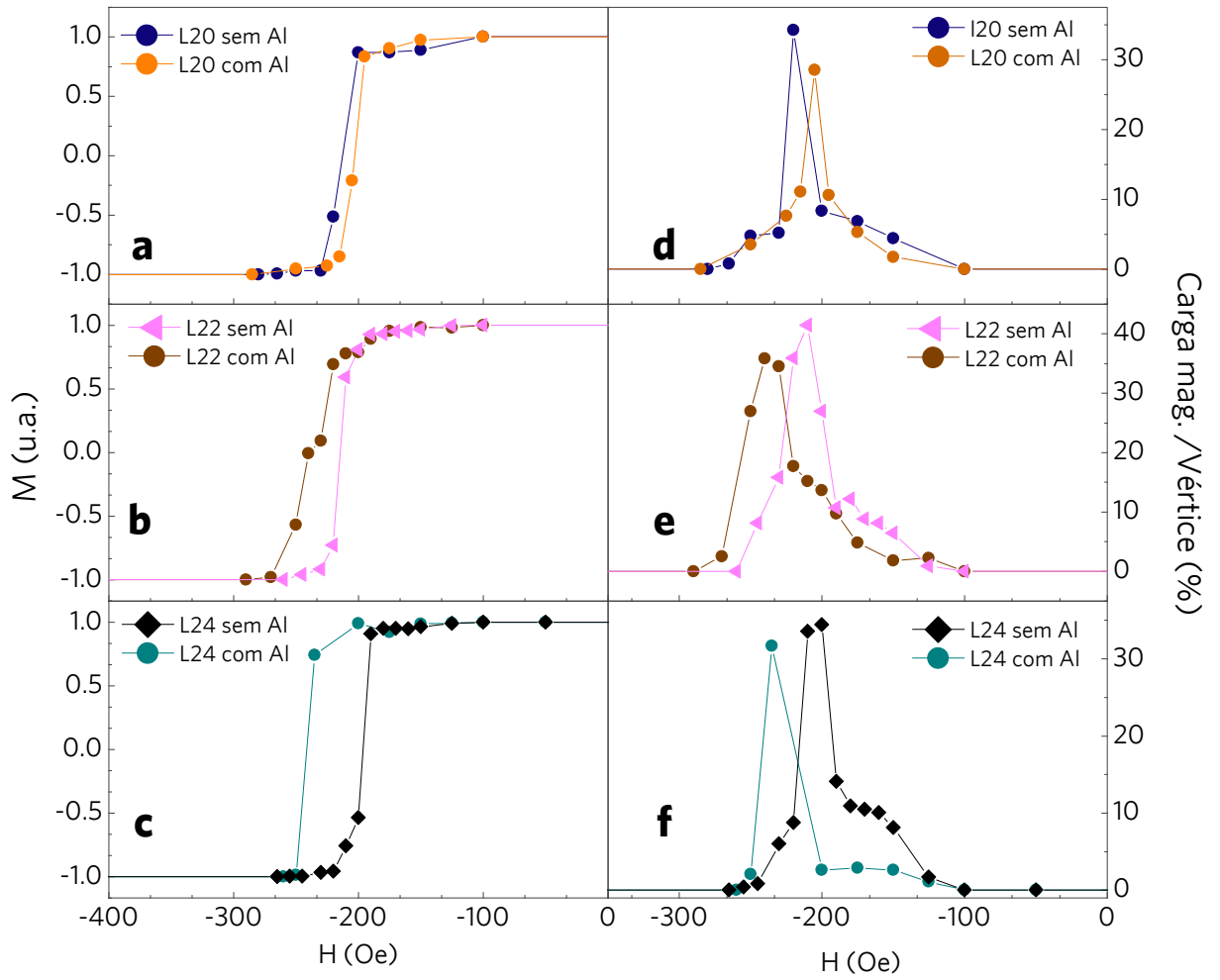


Figura 7.2: Histerese magnética comparando as redes (a) L20, (b) L22 e (c) L24 sem e com alumínio depositado. (d), (e) e (f) mostram a população de monopolos para as mesmas redes.

Caso o efeito de blindagem for de fato confirmado em investigações futuras, veremos uma infinidade de possibilidades no controle de emergência de cargas através de efeitos de proximidade. Isto abrirá possibilidades para testes com vários materiais como semicondutores, supercondutores e outros, abrindo uma nova área de pesquisa ainda não reportada na literatura.

## 7.2 Válvula de spin supercondutora

Observamos com sucesso o efeito de *spin switch* perfeito nas válvulas de spin supercondutoras GdN/NbN após a inserção de 0,3 nm de Gd na interface. O motivo de se colocar 0,3 nm de Gd vem do fato da interface ser rica em nitrogênio. Portanto uma camada bem fina de Gd interage com o excesso de  $N_2$  e forma GdN. Caso houvesse Gd metálico na interface, teríamos sinal no SQUID até a temperatura de Curie do Gd, que é de 298 K. Porém nenhum

comportamento ferromagnético foi detectado entre as temperaturas de Curie de GdN (60 K) e Gd (298 K) como mostra a figura 7.3, apoiando o fato de que o Gd não-reagido não permaneceu.

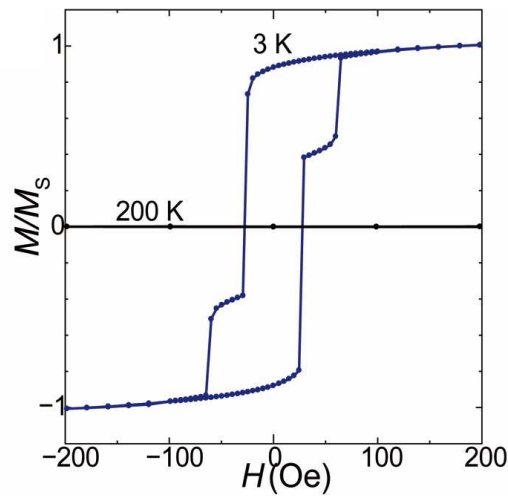


Figura 7.3: Curvas M-H a 3 K e 200 K para a válvula de spin modificada com a inserção de 0,3 nm de Gd com temperatura do substrato  $T_s = 300$  °C. Nenhum Gd residual foi detectado a partir da observação do comportamento magnético.

Este foi o primeiro trabalho sobre SSE com investigação interfacial. Nossos resultados podem ser utilizados como guia no aperfeiçoamento de novas estruturas, ou até mesmo de estruturas já conhecidas.

Aplicando o modelo de Kulic-Endres [136] \*, no qual o campo de troca é expresso pelo fator de quebra dos pares (parâmetro adimensional), podendo ser estimados a partir da razão de  $\Delta T_c/T_c^{AP}$ , obtém-se 0,013 para a estrutura sem Gd e 0,20 com Gd na interface. O aumento do fator de quebra ao inserir Gd pode ser atribuído à interface mais nítida com estequiometria regular e à perda de íons de  $Gd^{+3}$  que poderiam formar ligações metálicas. Novas investigações ainda são necessárias para entender o motivo do SSE não ter ocorrido em temperatura maiores, uma vez que o NbN consegue manter a temperatura de transição em 8 K mesmo com uma espessura de 5 nm.

Uma nova proposta para trabalhos futuros seria investigar o comportamento de nanoclusters de *permalloy* quando eletrodepositados sobre NbN. Como já foi mostrado em trabalhos anteriores [137], para tempos de eletrodeposição abaixo de 10 segundos, ocorre a formação dos clusters com geometria aproximadamente hemisférica com diâmetro inferior a 150 nm favorecendo o surgimento de vórtices como estado fundamental. Neste trabalho será investigado o efeito de proximidade em estruturas SC/cluster, FM1/FM2/SC/clusters, FM1/SC/clusters/FM2

\*Este modelo assume que o campo de troca entre as camadas FM é totalmente cancelado no estado AP.

e FM1/clusters/SC/FM2, além do comportamento do supercondutor mediante estas configurações magnéticas. As primeiras análises foram feitas depositando Ni-Fe sobre Silício para confirmar o aparecimento de vórtices e foram acompanhadas por medidas de susceptibilidade e simulações micromagnéticas pelo MuMax [138] como mostra a figura 7.4.

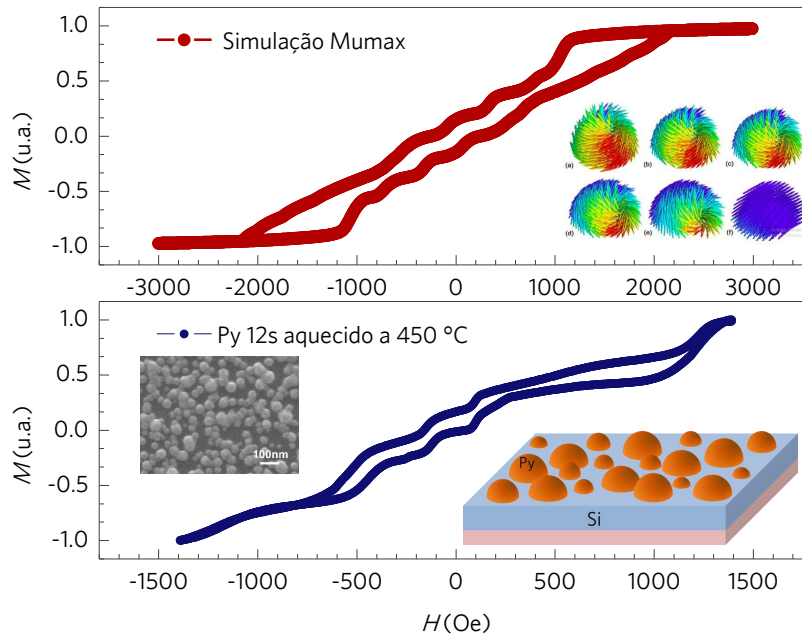


Figura 7.4: Magnetização em função do campo aplicado para Ni-Fe depositado sobre Si/IrMn(20nm). O gráfico do topo representa a simulação MuMax e o gráfico de baixo a medida experimental da estrutura.

Os degraus ao longo da curva  $M \times H$  representam a expulsão de vórtices de diferentes tamanhos de clusters a medida que o campo magnético externo vai aumentando. Como amostras eletrodepositadas não apresentam uma uniformidade no tamanho dos clusters, aqueles com tamanhos menores deixam o estado de vórtice antes dos maiores.

Uma outra proposta utilizaria nanoilhas de permalloy sobre NbN para analisar o controle do *spin switch* por meio da magnetização das nanoilhas e da presença de monopolos magnéticos. Como mostra a figura 7.5, apenas uma carreira de nanoilhas seria litografada sobre um material supercondutor, e de acordo com a orientação ferromagnética ou antiferromagnética das nanoilhas, o efeito de proximidade lateral seria capaz de alterar a temperatura de transição do material supercondutor. O controle de propriedades supercondutoras em redes de gelo de spin seria inovadora e teria grande impacto na comunidade científica pelas possíveis aplicabilidades em dispositivos de memória criogênica e de magnetricidade.

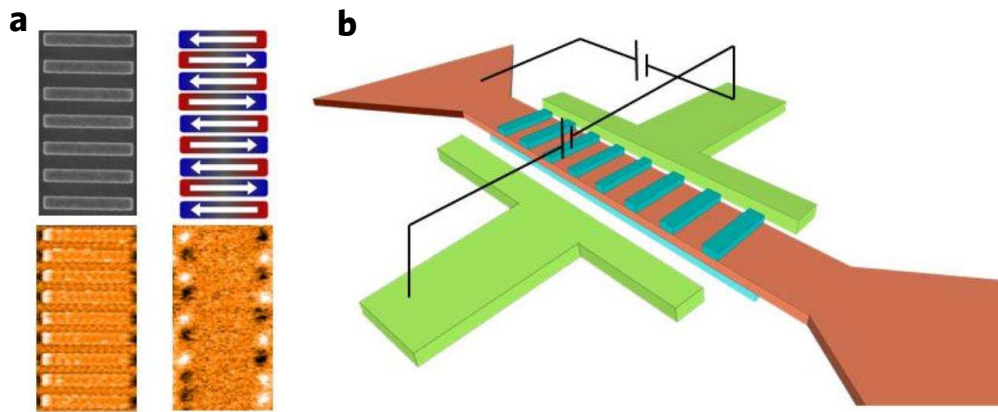


Figura 7.5: Esquema de fabricação de amostras de gelos de spin, com material supercondutor para análise de *spin switch*. (a) Caracterização da magnetização da rede nanomagnética realizada por microscopia de força magnética e (b) dispositivo proposto para ser investigado sob tensões de gate lateral e no ferromagneto com nanoilhas crescidas sobre supercondutor.

# Bibliografia

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, “Giant magnetoresistance of (001) fe/(001) cr magnetic superlattices,” *Physical review letters*, vol. 61, no. 21, p. 2472, 1988.
- [2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, “Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange,” *Physical review B*, vol. 39, no. 7, p. 4828, 1989.
- [3] C. Chappert, A. Fert, and F. N. Van Dau, “The emergence of spin electronics in data storage,” *Nature materials*, vol. 6, no. 11, p. 813, 2007.
- [4] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, “Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions,” *Physical review letters*, vol. 74, no. 16, p. 3273, 1995.
- [5] G.-X. Miao, A. V. Ramos, and J. S. Moodera, “Infinite magnetoresistance from the spin dependent proximity effect in symmetry driven bcc- fe/v/fe heteroepitaxial superconducting spin valves,” *Physical review letters*, vol. 101, no. 13, p. 137001, 2008.
- [6] P. De Gennes, “Coupling between ferromagnets through a superconducting layer,” *Physics Letters*, vol. 23, no. 1, pp. 10–11, 1966.
- [7] R. P. Loreto, L. Morais, C. de Araujo, W. Moura-Melo, A. Pereira, R. Silva, F. Nascimento, and L. Mól, “Emergence and mobility of monopoles in a unidirectional arrangement of magnetic nanoislands,” *Nanotechnology*, vol. 26, no. 29, p. 295303, 2015.
- [8] P. Zeeman, “The effect of magnetisation on the nature of light emitted by a substance,” 1897.
- [9] C. Kittel, *Introduction to solid state*. John Wiley & Sons, 1966.
- [10] R. E. Peierls and R. S. Peierls, *Quantum theory of solids*. Oxford University Press, 1955.
- [11] W. Heitler and F. London, “Wechselwirkung neutraler atome und homöopolare bindung nach der quantenmechanik,” *Zeitschrift für Physik*, vol. 44, no. 6-7, pp. 455–472, 1927.
- [12] P. Anderson, “Exchange in insulators: superexchange, direct exchange, and double exchange,” *Magnetism*, vol. 1, 1963.
- [13] R. M. White, R. M. White, and B. Bayne, *Quantum theory of magnetism*, vol. 1. Springer, 1983.
- [14] W. Heisenberg, “Multi-body problem and resonance in the quantum mechanics,” *Zeitschrift für Physik*, vol. 38, no. 6/7, pp. 411–426, 1926.
- [15] J.-G. J. Zhu and C. Park, “Magnetic tunnel junctions,” *Materials Today*, vol. 9, no. 11, pp. 36–45, 2006.
- [16] T. Miyazaki and N. Tezuka, “Giant magnetic tunneling effect in fe/al 2 o 3/fe junction,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 139, no. 3, pp. L231–L234, 1995.
- [17] B. Dieny, B. A. Gurney, S. S. Parkin, I. L. Sanders, V. S. Speriosu, and D. R. Wilhoit, “Magnetoresistive sensor having multilayer thin film structure,” Jan. 28 1997. US Patent 5,598,308.
- [18] C. Chappert, A. Fert, and F. N. Van Dau, “The emergence of spin electronics in data storage,” *Nature materials*, vol. 6, no. 11, pp. 813–823, 2007.
- [19] D. Apalkov, A. Khvalkovskiy, S. Watts, V. Nikitin, X. Tang, D. Lottis, K. Moon, X. Luo, E. Chen, A. Ong, *et al.*, “Spin-transfer torque magnetic random access memory (stt-mram),” *ACM Journal on Emerging Technologies in Computing Systems (JETC)*, vol. 9, no. 2, p. 13, 2013.
- [20] J. Camarero, J. De Miguel, R. Miranda, and A. Hernando, “Thickness-dependent coercivity of ultrathin co films grown on cu (111),” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 12, no. 35, p. 7713, 2000.

- [21] W. Giauque and M. F. Ashley, “Molecular rotation in ice at 10 k. free energy of formation and entropy of water,” *Physical review*, vol. 43, no. 1, p. 81, 1933.
- [22] W. Giauque and J. Stout, “The entropy of water and the third law of thermodynamics. the heat capacity of ice from 15 to 273Å° k.,” *Journal of the American Chemical Society*, vol. 58, no. 7, pp. 1144–1150, 1936.
- [23] L. Pauling, “The structure and entropy of ice and of other crystals with some randomness of atomic arrangement,” *Journal of the American Chemical Society*, vol. 57, no. 12, pp. 2680–2684, 1935.
- [24] J. D. Bernal and R. H. Fowler, “A theory of water and ionic solution, with particular reference to hydrogen and hydroxyl ions,” *The Journal of Chemical Physics*, vol. 1, no. 8, pp. 515–548, 1933.
- [25] A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. a. Cava, R. Siddharthan, and B. Shastry, “Zero point entropy in spin ice,” *Nature*, vol. 399, no. 6734, p. 333, 1999.
- [26] C. Castelnovo, R. Moessner, and S. L. Sondhi, “Magnetic monopoles in spin ice,” *Nature*, vol. 451, no. 7174, p. 42, 2008.
- [27] S. T. Bramwell and M. J. Gingras, “Spin ice state in frustrated magnetic pyrochlore materials,” *Science*, vol. 294, no. 5546, pp. 1495–1501, 2001.
- [28] J. P. Morgan, A. Stein, S. Langridge, and C. H. Marrows, “Thermal ground state ordering and elementary excitations in artificial magnetic square ice,” *Nature Physics*, vol. 7, no. 1, p. 75, 2011.
- [29] V. Kapaklis and e. Arnalds, “Melting artificial spin ice,” *New Journal of Physics*, vol. 14, no. 3, p. 035009, 2012.
- [30] S. Pollard, V. Volkov, and Y. Zhu, “Propagation of magnetic charge monopoles and dirac flux strings in an artificial spin ice lattice,” *Physical Review B*, vol. 85, no. 18, p. 180402, 2012.
- [31] . R. Wang, C. Nisoli, R. Freitas, J. Li, W. McConville, B. Cooley, M. Lund, N. Samarth, C. Leighton, V. Crespi, *et al.*, “Artificial spin ice in a geometrically frustrated lattice of nanoscale ferromagnetic islands,” *Nature*, vol. 439, no. 7074, p. 303, 2006.
- [32] I. Ribeiro, F. Nascimento, S. Ferreira, W. Moura-Melo, C. Costa, J. Borme, P. Freitas, G. Wysin, C. Araujo, and A. Pereira, “Realization of rectangular artificial spin ice and direct observation of high energy topology,” *Scientific reports*, vol. 7, no. 1, p. 13982, 2017.
- [33] A. Wills, R. Ballou, and C. Lacroix, “Model of localized highly frustrated ferromagnetism: The kagome spin ice,” *Physical Review B*, vol. 66, no. 14, p. 144407, 2002.
- [34] I. Gilbert, G. W. Chern, S. Zhang, L. OBrien, B. Fore, C. Nisoli, and P. Schiffer, “Emergent ice rule and magnetic charge screening from vertex frustration in artificial spin ice,” *Nature Physics*, vol. 10, no. 9, p. nphys3037, 2014.
- [35] T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto, and T. Ono, “Magnetic vortex core observation in circular dots of permalloy,” *Science*, vol. 289, no. 5481, pp. 930–932, 2000.
- [36] C. de Araujo, R. d. C. Silva, I. R. B. Ribeiro, F. S. Nascimento, J. F. Felix, S. O. Ferreira, L. A. d. S. Mól, W. Moura-Melo, and A. R. Pereira, “Magnetic vortex crystal formation in the antidot complement of square artificial spin ice,” *Applied Physics Letters*, vol. 104, no. 9, p. 092402, 2014.
- [37] I. Ribeiro, J. Felix, L. Figueiredo, P. Morais, S. Ferreira, W. Moura-Melo, A. Pereira, A. Quindeau, and C. de Araujo, “Investigation of ferromagnetic resonance and magnetoresistance in anti-spin ice structures,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 28, no. 45, p. 456002, 2016.
- [38] N. Perrissin, S. Lequeux, N. Strelkov, A. Chavent, L. Vila, L. D. Buda-Prejbeanu, S. Auffret, R. C. Sousa, I. L. Prejbeanu, and B. Dieny, “A highly thermally stable sub-20 nm magnetic random-access memory based on perpendicular shape anisotropy,” *Nanoscale*, vol. 10, no. 25, pp. 12187–12195, 2018.
- [39] G.-W. Chern, C. Reichhardt, and C. Nisoli, “Realizing three-dimensional artificial spin ice by stacking planar nanoarrays,” *Applied Physics Letters*, vol. 104, no. 1, p. 013101, 2014.
- [40] Y. Perrin, B. Canals, and N. Rougemaille, “Extensive degeneracy, coulomb phase and magnetic monopoles in artificial square ice,” *Nature*, vol. 540, no. 7633, p. 410, 2016.

- [41] F. Nascimento, L. Mól, W. Moura-Melo, and A. Pereira, “From confinement to deconfinement of magnetic monopoles in artificial rectangular spin ices,” *New Journal of Physics*, vol. 14, no. 11, p. 115019, 2012.
- [42] L. Mól, R. Silva, R. Silva, A. Pereira, W. Moura-Melo, and B. Costa, “Magnetic monopole and string excitations in two-dimensional spin ice,” *Journal of Applied Physics*, vol. 106, no. 6, p. 063913, 2009.
- [43] L. Mól, A. Pereira, and W. Moura-Melo, “Extending spin ice concepts to another geometry: The artificial triangular spin ice,” *Physical Review B*, vol. 85, no. 18, p. 184410, 2012.
- [44] H. K. Onnes, “The resistance of pure mercury at helium temperatures,” *Commun. Phys. Lab. Univ. Leiden*, vol. 12, no. 120, p. 1, 1911.
- [45] H. K. Onnes, “The superconductivity of mercury,” *Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden*, vol. 122, p. 124, 1911.
- [46] H. K. Onnes, “Investigations into the properties of substances at low temperatures, which have led, amongst other things, to the preparation of liquid helium,” *Nobel lecture*, vol. 4, 1913.
- [47] W. Meissner and R. Ochsenfeld, “A new effect in penetration of superconductors,” *Die Naturwissenschaften*, vol. 21, pp. 787–788, 1933.
- [48] A. Abrikosov, “Aa abrikosov, sov. phys. jetp 5, 1174 (1957).,” *Sov. Phys. JETP*, vol. 5, p. 1174, 1957.
- [49] N. Lectures, *Physics: 1901-1921*. Elsevier, 1967.
- [50] J. F. Annett, *Superconductivity, superfluids and condensates*, vol. 5. Oxford University Press, 2004.
- [51] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, “Theory of superconductivity,” *Physical Review*, vol. 108, no. 5, p. 1175, 1957.
- [52] A. Rutgers, “Note on supraconductivity,” *Physica*, vol. 1, no. 7-12, pp. 1055–1058, 1934.
- [53] J. Daunt and K. A. G. Mendelssohn, “An experiment on the mechanism of superconductivity,” *Proc. R. Soc. Lond. A*, vol. 185, no. 1001, pp. 225–239, 1946.
- [54] F. London and H. London, “The electromagnetic equations of the supraconductor,” in *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 149, pp. 71–88, The Royal Society, 1935.
- [55] H. London, “Phase-equilibrium of supraconductors in a magnetic field,” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, vol. 152, no. 877, pp. 650–663, 1935.
- [56] A. Pippard, “Ab pippard, proc. cambridge phil. soc. 47, 617 (1951),” in *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, vol. 47, p. 617, 1951.
- [57] P. K. M. (REMI.), *SUPERCONDUCTIVITY: An Introduction*. SPRINGER, 2019.
- [58] A. Pippard, “Ab pippard, proc. roy. soc.(london) a216, 547 (1953),” *Proc. Roy. Soc.(London)*, vol. 216, p. 547, 1953.
- [59] V. L. Ginzburg and L. D. Landau, “On the theory of superconductivity,” *Zh. eksp. teor. Fiz*, vol. 20, no. 1064-1082, p. 35, 1950.
- [60] A. Abrikosov and L. Gorkov, “On the theory of superconducting alloys. 1. the electrodynamics of alloys at absolute zero,” *Sov. Phys. JETP*, vol. 8, pp. 1090–1098, 1959.
- [61] R. Yan, G. Khalsa, S. Vishwanath, Y. Han, J. Wright, S. Rouvimov, D. S. Katzer, N. Nepal, B. P. Downey, D. A. Muller, *et al.*, “Gan/nbn epitaxial semiconductor/superconductor heterostructures,” *Nature*, vol. 555, no. 7695, p. 183, 2018.
- [62] B. Li, N. Roschewsky, B. A. Assaf, M. Eich, M. Epstein-Martin, D. Heiman, M. Münzenberg, and J. S. Moodera, “Superconducting spin switch with infinite magnetoresistance induced by an internal exchange field,” *Physical review letters*, vol. 110, no. 9, p. 097001, 2013.
- [63] F. Ostermann and P. Pureur, *Supercondutividade*. Editora Livraria da Fisica, 2005.

- [64] H. Fröhlich, “Theory of the superconducting state. i. the ground state at the absolute zero of temperature,” *Physical Review*, vol. 79, no. 5, p. 845, 1950.
- [65] M. Tinkham, *Introduction to superconductivity*. Courier Corporation, 2004.
- [66] J. P. Cascales, Y. Takamura, G. M. Stephen, D. Heiman, F. S. Bergeret, and J. S. Moodera, “Switchable josephson junction based on interfacial exchange field,” *Applied Physics Letters*, vol. 114, no. 2, p. 022601, 2019.
- [67] J. Linder and J. W. Robinson, “Superconducting spintronics,” *Nature Physics*, vol. 11, no. 4, pp. 307–315, 2015.
- [68] P. De Gennes, “Boundary effects in superconductors,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 36, no. 1, p. 225, 1964.
- [69] H. Meissner, “Superconductivity of contacts with interposed barriers,” *Physical Review*, vol. 117, no. 3, p. 672, 1960.
- [70] J. Zhu, X. Cheng, C. Boone, and I. Krivorotov, “Origin of the inverse spin switch effect in superconducting spin valves,” *Physical review letters*, vol. 103, no. 2, p. 027004, 2009.
- [71] G. Miao, “Spintronics driven by superconducting proximity effect,” in *Superconductors-New Developments*, InTech, 2015.
- [72] Z. Radović, M. Ledvij, L. Dobrosavljević-Grujić, A. I. Buzdin, and J. R. Clem, “Transition temperatures of superconductor-ferromagnet superlattices,” *Physical Review B*, vol. 44, no. 2, p. 759, 1991.
- [73] J. Jiang, D. Davidović, D. H. Reich, and C. Chien, “Oscillatory superconducting transition temperature in nb/gd multilayers,” *Physical review letters*, vol. 74, no. 2, p. 314, 1995.
- [74] A. Sidorenko, V. Zdravkov, A. Prepelitsa, C. Helbig, Y. Luo, S. Gsell, M. Schreck, S. Klimm, S. Horn, L. Tagirov, *et al.*, “Oscillations of the critical temperature in superconducting nb/ni bilayers,” *Annalen der Physik*, vol. 12, no. 1-2, pp. 37–50, 2003.
- [75] L. Gor’kov, “Theory of superconducting alloys in a strong magnetic field near the critical temperature,” *Soviet Physics JETP*, vol. 10, p. 998, 1960.
- [76] K. E. Gray, “Gor’kov-goodman relation in low- $\kappa$  aluminum films,” *Physical Review B*, vol. 13, no. 9, p. 3774, 1976.
- [77] P. Tedrow, R. Meservey, and B. Schwartz, “Experimental evidence for a first-order magnetic transition in thin superconducting aluminum films,” *Physical Review Letters*, vol. 24, no. 18, p. 1004, 1970.
- [78] B. Goodman, “Bb goodman, ibm j. res. develop. 6, 63 (1962),” *Ibm J. Res. Develop.*, vol. 6, p. 63, 1962.
- [79] K. Maki, “The magnetic properties of superconducting alloys i,” *Physics Physique Fizika*, vol. 1, no. 1, p. 21, 1964.
- [80] N. Werthamer, E. Helfand, and P. Hohenberg, “Temperature and purity dependence of the superconducting critical field, h c 2. iii. electron spin and spin-orbit effects,” *Physical Review*, vol. 147, no. 1, p. 295, 1966.
- [81] E. Helfand and N. Werthamer, “Temperature and purity dependence of the superconducting critical field, h c 2. ii,” *Physical Review*, vol. 147, no. 1, p. 288, 1966.
- [82] M. Schossmann and J. Carbotte, “Pauli limiting of the upper critical magnetic field,” *Physical Review B*, vol. 39, no. 7, p. 4210, 1989.
- [83] T. Berlincourt and R. Hake, “Superconductivity at high magnetic fields,” *Physical Review*, vol. 131, no. 1, p. 140, 1963.
- [84] A. M. Clogston, “Upper limit for the critical field in hard superconductors,” *Physical Review Letters*, vol. 9, no. 6, p. 266, 1962.
- [85] R. Eisberg and R. Resnick, *Quantum physics*. John Wiley New York, 1974.
- [86] H. Nam, H. Chen, T. Liu, J. Kim, C. Zhang, J. Yong, T. R. Lemberger, P. A. Kratz, J. R. Kirtley, K. Moler, *et al.*, “Ultrathin two-dimensional superconductivity with strong spin-orbit coupling,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 113, no. 38, pp. 10513–10517, 2016.
- [87] R. Hake, “Upper-critical-field limits for bulk type-ii superconductors,” *Applied Physics Letters*, vol. 10, no. 6, pp. 189–192, 1967.

- [88] S. Chockalingam, M. Chand, J. Jesudasan, V. Tripathi, and P. Raychaudhuri, “Superconducting properties and hall effect of epitaxial nbn thin films,” *Physical Review B*, vol. 77, no. 21, p. 214503, 2008.
- [89] S. Ghannadzadeh, J. D. Wright, F. R. Foronda, S. J. Blundell, S. J. Clarke, and P. A. Goddard, “Upper critical field of nbn thin films as superconductors,” *Physical Review B*, vol. 89, no. 5, p. 054502, 2014.
- [90] J. Jesudasan, M. Mondal, M. Chand, A. Kamlapure, S. Kumar, G. Saraswat, V. C. Bagwe, V. Tripathi, and P. Raychaudhuri, “Upper critical field and coherence length of homogenously disordered epitaxial 3-dimensional nbn films,” in *AIP Conference Proceedings*, vol. 1349, pp. 923–924, AIP, 2011.
- [91] J. Hauser, “Coupling between ferrimagnetic insulators through a superconducting layer,” *Physical Review Letters*, vol. 23, no. 7, p. 374, 1969.
- [92] G. Deutscher and F. Meunier, “Coupling between ferromagnetic layers through a superconductor,” *Physical Review Letters*, vol. 22, no. 9, p. 395, 1969.
- [93] Y. A. Izyumov, Y. N. Proshin, and M. G. Khusainov, “Competition between superconductivity and magnetism in ferromagnet/superconductor heterostructures,” *Physics-Uspekhi*, vol. 45, no. 2, pp. 109–148, 2002.
- [94] M. A. Ruderman and C. Kittel, “Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons,” *Physical Review*, vol. 96, no. 1, p. 99, 1954.
- [95] G. Sarma, “On the influence of a uniform exchange field acting on the spins of the conduction electrons in a superconductor,” *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 24, no. 8, pp. 1029–1032, 1963.
- [96] Y. Zhu, A. Pal, M. G. Blamire, and Z. H. Barber, “Superconducting exchange coupling between ferromagnets,” *Nature Materials*, 2016.
- [97] D. Stamopoulos, E. Aristomenopoulou, and A. Lagogiannis, “Co/nb/co trilayers as efficient cryogenic spin valves and supercurrent switches: the relevance to the standard giant and tunnel magnetoresistance effects,” *Superconductor Science and Technology*, vol. 27, no. 9, p. 095008, 2014.
- [98] B. Baek, W. H. Rippard, S. P. Benz, S. E. Russek, and P. D. Dresselhaus, “Hybrid superconducting-magnetic memory device using competing order parameters,” *Nature communications*, vol. 5, p. 3888, 2014.
- [99] E. Gingrich, B. M. Niedzielski, J. A. Glick, Y. Wang, D. Miller, R. Loloee, W. Pratt Jr, and N. O. Birge, “Controllable  $0-\pi$  josephson junctions containing a ferromagnetic spin valve,” *Nature Physics*, vol. 12, no. 6, p. 564, 2016.
- [100] S. Oh, D. Youm, and M. Beasley, “A superconductive magnetoresistive memory element using controlled exchange interaction,” *Applied physics letters*, vol. 71, no. 16, pp. 2376–2378, 1997.
- [101] P. Leksin, N. Garifyanov, I. Garifullin, J. Schumann, H. Vinzelberg, V. Kataev, R. Klingeler, O. Schmidt, and B. Büchner, “Full spin switch effect for the superconducting current in a superconductor/ferromagnet thin film heterostructure,” *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 10, p. 102505, 2010.
- [102] A. Singh, C. Sürgers, and H. v. Löhneysen, “Superconducting spin switch with perpendicular magnetic anisotropy,” *Physical Review B*, vol. 75, no. 2, p. 024513, 2007.
- [103] F. Bergeret, A. Volkov, and K. Efetov, “Long-range proximity effects in superconductor-ferromagnet structures,” *Physical review letters*, vol. 86, no. 18, p. 4096, 2001.
- [104] A. Singh, S. Voltan, K. Lahabi, and J. Aarts, “Colossal proximity effect in a superconducting triplet spin valve based on the half-metallic ferromagnet cro<sub>2</sub>,” *Physical Review X*, vol. 5, no. 2, p. 021019, 2015.
- [105] L. Hartshorn, “The properties of mutual inductance standards at telephonic frequencies,” *Proceedings of the Physical Society of London*, vol. 38, no. 1, p. 302, 1925.
- [106] M. Nikolo, “Superconductivity: A guide to alternating current susceptibility measurements and alternating current susceptometer design,” *American Journal of Physics*, vol. 63, no. 1, pp. 57–65, 1995.
- [107] K. L. Chopra, *Thin film phenomena*. McGraw-Hill, 1969.
- [108] R. Behrisch, “Sputtering by particle bombardment i,” *Sputtering by Particle Bombardment I: Physical Sputtering of Single-Element Solids*, vol. 1, 1981.

- [109] S. Berg and T. Nyberg, “Fundamental understanding and modeling of reactive sputtering processes,” *Thin solid films*, vol. 476, no. 2, pp. 215–230, 2005.
- [110] G. M. Wysin, W. Moura-Melo, L. Mól, and A. Pereira, “Dynamics and hysteresis in square lattice artificial spin ice,” *New Journal of Physics*, vol. 15, no. 4, p. 045029, 2013.
- [111] I. Gilbert, G.-W. Chern, B. Fore, Y. Lao, S. Zhang, C. Nisoli, and P. Schiffer, “Direct visualization of memory effects in artificial spin ice,” *Physical Review B*, vol. 92, no. 10, p. 104417, 2015.
- [112] J. Rodrigues and L. Mól, “Towards magnetic monopole interaction measurement in artificial spin ice systems,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 458, pp. 327–334, 2018.
- [113] E. Antonova, D. Dzhuraev, G. Motulevich, and V. Sukhov, “Superconducting energy gap of niobium nitride,” *Sov. Phys.-JETP (Engl. Transl.);(United States)*, vol. 53, no. 6, 1981.
- [114] J. Q. Xiao and C. Chien, “Proximity effects in superconductor/insulating-ferromagnet nbn/gdn multilayers,” *Physical review letters*, vol. 76, no. 10, p. 1727, 1996.
- [115] J. Clarke and A. I. Braginski, *The SQUID handbook: Applications of SQUIDs and SQUID systems*. John Wiley & Sons, 2006.
- [116] K. Senapati, M. G. Blamire, and Z. H. Barber, “Suppression of magnetic coupling in superconducting gdn-nbn-gdn trilayers,” *Applied Physics Letters*, vol. 103, no. 13, p. 132406, 2013.
- [117] F. Huttmann, D. Klar, N. Atodiresei, C. Schmitz-Antoniak, A. Smekhova, A. J. Martínez-Galera, V. Caciuc, G. Bihlmayer, S. Blügel, T. Michely, *et al.*, “Magnetism in a graphene-4 f- 3 d hybrid system,” *Physical Review B*, vol. 95, no. 7, p. 075427, 2017.
- [118] M. Mathur, D. Deis, and J. Gavaler, “Lower critical field measurements in nbn bulk and thin films,” *Journal of Applied Physics*, vol. 43, no. 7, pp. 3158–3161, 1972.
- [119] T. Baumgartner, M. Eisterer, H. Weber, R. Flükiger, C. Scheuerlein, and L. Bottura, “Effects of neutron irradiation on pinning force scaling in state-of-the-art nb3sn wires,” *Superconductor Science and Technology*, vol. 27, no. 1, p. 015005, 2013.
- [120] R. Hake, “Paramagnetic superconductivity in extreme type-ii superconductors,” *Physical Review*, vol. 158, no. 2, p. 356, 1967.
- [121] M. Ashkin and J. Gavaler, “The upper critical field of nbn film,” *Journal of Applied Physics*, vol. 49, no. 4, pp. 2449–2451, 1978.
- [122] M. Daluz, C. Dos Santos, C. Shigue, F. De Carvalho Jr, and A. Machado, “The van der pauw method of measurements in high-*t<sub>c</sub>* superconductors,” *Materials Science-Polans*, vol. 27, no. 2, 2009.
- [123] H. Castro, J. Galvis, and S. Castro, “Automated setup for van der pauw hall measurements,” *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, vol. 60, no. 1, pp. 198–205, 2011.
- [124] A. Kamlapure, M. Mondal, M. Chand, A. Mishra, J. Jesudasan, V. Bagwe, L. Benfatto, V. Tripathi, and P. Raychaudhuri, “Measurement of magnetic penetration depth and superconducting energy gap in very thin epitaxial nbn films,” *Applied Physics Letters*, vol. 96, no. 7, p. 072509, 2010.
- [125] S. Kubo, M. Asahi, M. Hikita, and M. Igarashi, “Magnetic penetration depths in superconducting nbn films prepared by reactive dc magnetron sputtering,” *Applied Physics Letters*, vol. 44, no. 2, pp. 258–260, 1984.
- [126] D. Dew-Hughes, “Superconducting a-15 compounds: A review,” *Cryogenics*, vol. 15, no. 8, pp. 435–454, 1975.
- [127] M. Vasyutin, N. Kuzmichev, and D. Shilkin, “Upper critical field of niobium nitride thin films,” *Physics of the Solid State*, vol. 58, no. 2, pp. 236–239, 2016.
- [128] P. De Gennes, “Pg de gennes, physik kondensierten materie 3, 79 (1964),” *Physik Kondensierten Materie*, vol. 3, p. 79, 1964.
- [129] P.-G. De Gennes, *Superconductivity of metals and alloys*. CRC Press, 2018.

- [130] I. Charaev, T. Silbernagel, B. Bachowsky, A. Kuzmin, S. Doerner, K. Ilin, A. Semenov, D. Roditchev, D. Y. Vodolazov, and M. Siegel, “Proximity effect model of ultranarrow nbn strips,” *Physical Review B*, vol. 96, no. 18, p. 184517, 2017.
- [131] A. Engel, K. Inderbitzin, A. Schilling, R. Lusche, A. Semenov, H.-W. Hübers, D. Henrich, M. Hofherr, K. Il’in, and M. Siegel, “Temperature-dependence of detection efficiency in nbn and tan snspd,” *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, vol. 23, no. 3, pp. 2300505–2300505, 2013.
- [132] D. Miller, M. Strongin, O. Kammerer, and B. Streetman, “Experimental search for excitonic superconductivity,” *Physical Review B*, vol. 13, no. 11, p. 4834, 1976.
- [133] M. Mondal, A. Kamlapure, S. C. Ganguli, J. Jesudasan, V. Bagwe, L. Benfatto, and P. Raychaudhuri, “Enhancement of the finite-frequency superfluid response in the pseudogap regime of strongly disordered superconducting films,” *Scientific reports*, vol. 3, p. 1357, 2013.
- [134] S. Ezaki, K. Makise, B. Shinozaki, T. Odo, T. Asano, H. Terai, T. Yamashita, S. Miki, and Z. Wang, “Localization and interaction effects in ultrathin epitaxial nbn superconducting films,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 24, no. 47, p. 475702, 2012.
- [135] B. Engel, J. Akerman, B. Butcher, R. Dave, M. DeHerrera, M. Durlam, G. Grynkewich, J. Janesky, S. Pietambaram, N. Rizzo, *et al.*, “A 4-mb toggle mram based on a novel bit and switching method,” *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 41, no. 1, pp. 132–136, 2005.
- [136] M. L. Kulić and M. Endres, “Ferromagnetic-semiconductor–singlet-(or triplet) superconductor–ferromagnetic-semiconductor systems as possible logic circuits and switches,” *Physical Review B*, vol. 62, no. 17, p. 11846, 2000.
- [137] C. De Araujo, M. Munford, R. Delatorre, R. da Silva, V. Zoldan, A. A. Pasa, and N. Garcia, “Spin-polarized current in permalloy clusters electrodeposited on silicon: two-dimensional giant magnetoresistance,” *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 22, p. 222101, 2008.
- [138] A. Vansteenkiste and B. Van de Wiele, “Mumax: a new high-performance micromagnetic simulation tool,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 323, no. 21, pp. 2585–2591, 2011.

# 8 Apêndice A - Publicações

## Tuning magnetic monopole population and mobility in unidirectional array of nanomagnets as a function of lattice parameters

Cite as: Appl. Phys. Lett. **114**, 142401 (2019); doi: 10.1063/1.5088219

Submitted: 9 January 2019 · Accepted: 25 March 2019 ·

Published Online: 8 April 2019



R. S. Gonçalves,<sup>1</sup> R. P. Loreto,<sup>1</sup> T. S. de Paiva,<sup>1</sup> J. Borme,<sup>2</sup> P. P. Freitas,<sup>2</sup> and C. I. L. de Araujo<sup>1,a)</sup>

### AFFILIATIONS

<sup>1</sup>Laboratory of Spintronics and nanomagnetism (LabSpiN), Departamento de Física, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa 36570-900, Minas Gerais, Brazil

<sup>2</sup>INL-International Iberian Nanotechnology Laboratory, 4715-330 Braga, Portugal

<sup>a)</sup>Electronic mail: [dearaujo@ufv.br](mailto:dearaujo@ufv.br)

### ABSTRACT

Sets of nanomagnets are often utilized to mimic cellular automata in the design of nanomagnetic logic devices or frustration and emergence of magnetic monopoles in artificial spin ice systems, once that unidirectional arrangement of nanomagnets can behave as artificial spin ice, with frustration arising from second neighbors' dipolar interaction, and present good magnetic monopole mobility due to the low string tension among charges. Here, we present an experimental investigation of magnetic monopole population and mobility as a function of lateral and longitudinal distance among nanomagnets. The observed results could be useful in the nanomagnet logic device design and bring new insights about several possible designs for tuning magnetic monopole unidirectional mobility and transport under a low external magnetic field for further application in magnetricity.

Published under license by AIP Publishing. <https://doi.org/10.1063/1.5088219>

With recent improvements in nanofabrication techniques, allowing the development of samples composed of elements of a few nanometer size, well organized and distributed in large areas, several new technologies based on nanodevices could be acquired, such as the huge improvement in computer processor scalability<sup>1</sup> or the utilization of metamaterials for nanophotonics development.<sup>2</sup> In the field of magnetism, nanofabrication processes allowed the manipulation of magnetic domain structures, in general, due to the combination of materials' magnetic parameters with the shape anisotropy provided by different nanostructures, enabling a huge increase in the information storage density and the reading speed. Many examples can be highlighted, such as the increase in the capability of information storage density in magnetic nanodots<sup>3</sup> or antidots,<sup>4,5</sup> the development of nonvolatile magnetoresistive random access memories with in-plane<sup>6</sup> and out-of-plane<sup>7</sup> single domain magnetization, achieved in stacks of a few nanometer diameter, multibits stored in a single stack by magnetic vortex configuration<sup>8</sup> and very stable and fast information transport allowed by the magnetic skyrmions created and manipulated in racetracks.<sup>9-12</sup> Other interesting features could be achieved by the nanofabrication of magnetic nanobars with single domain

magnetization, arranged precisely in several geometries in large areas, to replicate quantum cellular automata<sup>13</sup> behavior in nanomagnetic logic devices,<sup>14,15</sup> or the realization and investigation of frustration in artificial spin ice systems<sup>16</sup> at room temperature, due to the stability of those nanomagnets' magnetization against thermal fluctuations. Such a system was proposed to serve as feasible mimetization of pyrochlore natural spin ices,<sup>17,18</sup> which present at very low temperatures (below 1 K) a frustration of its magnetic moment. This material group name was given due to the similarity in the frustration of its atomic magnetic moment with the atomic position in water ice. In the artificial spin ices, geometrical frustration generated artificially by the nanomagnet distribution favors the ground state symmetry break by external excitations and emergency of magnetic monopoles in the vertex among nanomagnets.<sup>19,20</sup> A unidirectional arrangement of nanomagnets, which have been well treated previously as 2D Ising Lattice,<sup>21-23</sup> was also characterized in our previous work like unidirectional artificial spin ice (UDRASI), due to frustrations with second neighbors, with the generation of magnetic charge pairs and energetic string connecting them.<sup>24</sup> By representing the nanomagnets as point-like dipoles, the Hamiltonian of the system could be described as

# Experimental and theoretical evidences for the ice regime in planar artificial spin ices

R P Loreto<sup>1</sup>, F S Nascimento<sup>2</sup>, R S Gonçalves<sup>1</sup>, J Borme<sup>3</sup>, J C Cezar<sup>4</sup>, C Nisoli<sup>5</sup>, A R Pereira<sup>1</sup> and C I L de Araujo<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratory of Spintronics and Nanomagnetism (LabSpiN), Departamento de Física, Universidade Federal de Viçosa, 36570-900, Viçosa, Minas Gerais, Brazil

<sup>2</sup> Departamento de Física, Universidade Federal de Ouro Preto, 35931-008, João Monlevade, Minas Gerais, Brazil

<sup>3</sup> INL-International Iberian Nanotechnology Laboratory, 4715-330, Braga, Portugal

<sup>4</sup> Laboratório Nacional de Luz Síncrotron-LNLS, CP 6192, 13083-970 Campinas, Brazil

<sup>5</sup> Theoretical Division and Institute for Materials Science, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM 87545, United States of America

E-mail: [apereira@ufv.br](mailto:apereira@ufv.br) and [dearaujo@ufv.br](mailto:dearaujo@ufv.br)

Received 23 August 2018, revised 30 October 2018

Accepted for publication 7 November 2018

Published 6 December 2018



CrossMark

## Abstract

In this work, we explore a kind of geometrical effect in the thermodynamics of artificial spin ices (ASI). In general, such artificial materials are athermal. Here, we demonstrate that geometrically driven dynamics in ASI can open up the panorama of exploring distinct ground states and thermally magnetic monopole excitations. It is shown that a particular ASI lattice will provide a richer thermodynamics with nanomagnet spins experiencing less restriction to flip precisely in a kind of rhombic lattice. This can be observed by analysis of only three types of rectangular artificial spin ices (RASI). Denoting the horizontal and vertical lattice spacings by  $a$  and  $b$ , respectively, then, a RASI material can be described by its aspect ratio  $\gamma \equiv a/b$ . The rhombic lattice emerges when  $\gamma = \sqrt{3}$ . So, by comparing the impact of thermal effects on the spin flips in these three appropriate different RASI arrays, it is possible to find a system very close to the ice regime.

Keywords: nanomagnetism, spin ices, magnetic monopoles

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

## Introduction

Arrays of nanomagnets designed to resemble the spin ice materials (disordered magnetic states) are known as artificial spin ices (ASI). Nowadays, with the advances of the nanotechnology and nanofabrication, ASI systems have become so famous as well as their natural counterparts, with the advantage that they can be constructed with desirable geometries and properties. The first ASI was built in 2006 and it consists of a two-dimensional (2D) square array of 80 000 elongated magnetic nanoislands, each a few hundred nanometers long [1]. The net magnetic moment (spin) of each individual nanoisland is aligned parallel to its longest axis (like in a bar magnet), and is coupled to all other nanoislands of the planar array by the ubiquitous dipolar interaction. Then, in its

original configuration, ASI tiles a square lattice of vertices, with four nanoislands meeting at each vertex.

The ground state of the artificial square ice obeys the ice rule, which remains the familiar two-in, two-out (two spins must point in, while the other two must point out in each vertex). However, in two dimensions, the standard ice rule is no longer degenerate [1–3]. In addition, ASI systems have long been athermal (these compounds were almost always found in frozen at room temperature), until the most recent investigations on patterned ultrathin magnetic films could pave the way to explore and visualize the real-time dynamics of all kinds of different frustrated geometries. Indeed, recently, several works have given attention to certain thermal properties of ASI compounds in diverse types of planar lattices [4–12]. However, the 2D lattice obeying the usual two-in, two-out ice

## 9 Apêndice B - Difração de raios-X de GdN e NbN

