

Universidade Federal de São Carlos
Centro de Ciências Exatas e de Tecnologia
Departamento de Física

Caio Cesar Quaglio Gomes

**CRESCIMENTO E CARACTERIZAÇÃO DE FILMES FINOS
SUPERCONDUTORES DE CHUMBO**

**Trabalho de Conclusão de Curso 2
Bacharelado em Física**

Orientador: Prof. Dr. Maycon Motta

**São Carlos
2023**

Caio Cesar Quaglio Gomes

CRESCIMENTO E CARACTERIZAÇÃO DE FILMES FINOS
SUPERCONDUTORES DE CHUMBO

Trabalho de Conclusão de Curso apresentado à Universidade Federal de São Carlos, como parte dos requisitos para a obtenção do grau de Bacharel em Física.

Orientador: Prof. Dr. Maycon Motta

São Carlos
2023

Agradecimentos

Para quem está distante, o processo pode parecer fácil. Mas só quem está por perto sabe das dificuldades e desafios enfrentados por quem “só estuda”. Sendo assim, deixo aqui algumas palavras de gratidão para quem me acompanhou e me auxiliou durante a minha graduação.

Em primeiro lugar, agradeço aos meus pais, Luiz Cesar e Alessandra, e ao meu irmão Caique, pelo suporte e por tudo que sempre fizeram por mim. Vocês são minha base e minha força. Também agradeço aos meus amigos, Guilherme (Pêra), Nicolas e Pedro, pelos momentos de diversão e descontração. É os guri.

Agradeço ao meu orientador, Prof. Dr. Maycon Motta, não apenas pela orientação desde o início da minha jornada científica no GSM, mas por sua amizade e por sempre confiar em mim. Ainda no GSM, não poderia deixar de agradecer ao meu técnico favorito e amigo, o homem do gelo, Claudio Raffa, por todo o auxílio, e ao Prof. Dr. Alexandre J. Gualdi por todas as importantes discussões.

Agradeço ao meu grande amigo e coorientador Davi Chaves por todos os ensinamentos, não só técnicos, mas também sobre a vida. Agradeço também à Dra. Patrícia Abrantes, que me motivou e se preocupou comigo nos mais diversos momentos. Vocês são presentes especiais que a vida me deu. Bora pro Habib's?

Agradeço à minha amiga, minha letrista, minha companheira, minha amada Mikelly. Sem sua paciência, seu carinho e sem o apoio que sempre me deu, eu não chegaria até aqui.

Agradeço também à FAPESP (Número do processo 2022/09792-6) por financiar a minha Iniciação Científica, na qual este trabalho foi baseado.

Resumo

Filmes finos de chumbo são de interesse para pesquisas fundamentais em supercondutividade e aplicação em dispositivos supercondutores devido à temperatura crítica relativamente alta desse material e ao fato de apresentarem características de supercondutores do tipo II. Sendo assim, a obtenção de filmes de alta qualidade, mediante o controle de parâmetros termodinâmicos no crescimento, é importante para o aprimoramento das propriedades supercondutoras. Em estudos anteriores, foi mostrado que filmes de chumbo depositados por evaporação térmica à temperatura ambiente apresentam grãos grandes e desconexos. Por outro lado, quando a deposição ocorre com o substrato mantido à temperatura do nitrogênio líquido, o resultado são filmes com menor tamanho de grão e maior homogeneidade. Motivados por isso, neste trabalho investigamos o crescimento de filmes de chumbo com o substrato mantido em diferentes temperaturas para análise das propriedades microestruturais e supercondutoras resultantes. Verificamos que, embora o filme crescido a 77 K tenha apresentado maior qualidade microestrutural, a capacidade de blindagem magnética do filme crescido à temperatura ambiente é superior. Para o controle de temperatura, foi projetado e testado um dispositivo de aquecimento que será utilizado em estudos futuros. Além disso, neste trabalho são apresentados estudos de um filme supercondutor de chumbo realizados a partir de transformações em imagens magneto-ópticas, possibilitando análises das densidades de fluxo magnético e de corrente nos regimes de penetração suave e de avalanches, bem como a obtenção de curvas de magnetização.

Palavras-chave: supercondutividade, chumbo, filmes finos, evaporação térmica

Lista de Figuras

1	Dispositivo supercondutor (<i>weak-link</i>) de Pb depositado a (a) 77 K e (b) temperatura ambiente [5]. (c)-(d) Imagens de MEV de um filme fino de Pb depositado a 77 K com taxa de deposição de 5 Å/s no GSM. [6].	8
2	Curva de resistência elétrica em função da temperatura obtida por Onnes para uma amostra de Hg, na qual se verifica $T_c = 4,2$ K [9].	9
3	Diagramas $H-T$ para supercondutores do (a) tipo I e (b) tipo II. Adaptado de [12].	11
4	(a) Representação das geometrias e sistema de coordenadas utilizado e os perfis das densidades de corrente normalizada por J_c e de fluxo magnético normalizada com relação ao valor de campo em que a frente de fluxo alcança o centro do material, no caso de (b)-(c) material volumétrico e (d)-(e) filme fino. As setas indicam a direção de evolução do perfil com o aumento do campo aplicado. Adaptado de [21].	13
5	Curva de histerese magnética típica de um supercondutor do tipo II.	14
6	Imagens de magneto-ótica (MO) de um filme de Nb com $H = 25$ Oe para (a) $T = 6,0$ K e (b) $T = 2,5$ K. Adaptado de [23].	15
7	<i>Loop</i> de retroalimentação das instabilidades termomagnéticas que dão origem às avalanches de fluxo. Adaptado de [23].	15
8	Representação esquemática de uma câmara de evaporação térmica.	16
9	Modos de crescimento de filmes finos: (a) Volmer-Weber, (b) Frank-van der Merwe e (c) Stranski-Krastanov.	18
10	Esquema da nucleação atômica com representação das energias superficiais. Adaptado de [32].	18
11	Imagens de MEV de filmes finos de Pb crescidos sobre substratos mantidos a (a) 30 °C, (b) 90 °C, (c) 160 °C e (d) 230 °C. As barras de tamanho representam comprimentos de 2 μ m. Adaptado de [35].	19
12	(a) Fotografia do aparato experimental completo no LTFD, (b) representação esquemática e (c) fotografia da câmara com a segunda versão do porta-substratos.	21
13	Imagens de microscopia ótica das amostras (a) PbAl300K, (b) PbGe77K e (c) PbGe300K.	22
14	(a) Esquema de funcionamento da técnica [19] e (b) estação de MOI do GSM.	24
15	Processo de calibração para transformação de intensidade luminosa em densidade de fluxo magnético a partir de resultados do imageamento magneto-ótico. Adaptado de [40].	25

16	Imagens de MEV das amostras (a) PbGe77K e (b) PbGe300K com magnificações de 5000x e 20000x.	26
17	Histogramas de tamanho dos grãos das amostras (a) PbGe77K e (b) PbGe300K, medidos nas imagens de MEV com magnificações de 20000x. As médias obtidas são dadas pelos valores de A na figura.	27
18	Imagens de MO das amostras (a) PbGe77K e (b) PbGe300K com campo aplicado de 5,0 Oe, 25,0 Oe e 50,0 Oe. Todas as imagens foram tomadas à temperatura reduzida $T/T_c = 0,5$	28
19	Perfis de B das amostras (a) PbGe77K e (b) PbGe300K com campo aplicado de 5,0 Oe, 25,0 Oe e 50,0 Oe, tomados como a média sobre as faixas azuis das imagens de MO da Figura 18. As linhas vermelhas delimitam as bordas das amostras.	29
20	Curvas de magnetização normalizada (a) em função do campo aplicado com $T/T_c = 0,5$ e (b) em função da temperatura reduzida após procedimento ZFC e com $H = 10$ Oe. As curvas azuis correspondem ao filme crescido a 77 K e as laranjas ao filme crescido a 300 K.	30
21	Imagens de MO à temperatura de 4,5 K e campo $H = 40$ Oe (a) sem tratamento e (b) após procedimento de transformação. No painel (c) são apresentados os perfis obtidos sobre as faixas azuis.	31
22	Imagens de MO e perfis de B com $H = 34$ Oe e temperatura de (a) 4,0 K, (b) 4,5 K e (c) 6,0 K. Os perfis foram tomados como as médias calculadas sobre as faixas azuis nas imagens.	32
23	Comparações entre as curvas $M \times H$ obtidas via MOI (azul) e SQUID (vermelha) em temperaturas de (a) 4,0 K, (b) 4,5 K e (c) 6,0 K. Os painéis à direita mostram ampliações do quarto quadrante de cada curva, correspondentes ao início do ciclo de aplicação de campo.	33
24	Circulação de \mathbf{J} indicada por setas vermelhas normalizadas, com módulo dado pelo nível de cinza, e perfis de J_x e J_y tomados sobre as faixas vermelhas e azuis, respectivamente, para (a) $T = 4,5$ K e $H = 45$ Oe, e (b) $T = 4,0$ K e $H = 34$ Oe.	35
25	Testes do dedo-frio. Em (a) é possível verificar o fio de manganina como elemento de aquecimento e em (b) a formação de camada de gelo após o resfriamento em condições ambientes. Em (c) e (d) são apresentados os gráficos obtidos nos testes de resfriamento e aquecimento, respectivamente.	38
26	(a) Desenho do dispositivo porta-substratos projetado e (b) fotografia do mesmo após adição do elemento resistivo.	38
27	Simulações e testes de aquecimento, respectivamente, do dispositivo com (a)-(b) fio AWG 36 dissipando 38 W e (c)-(d) fio AWG 30 dissipando 26 W.	39

Sumário

1	Introdução	7
2	Fundamentos Teóricos	8
2.1	Aspectos Básicos de Supercondutividade	8
2.1.1	Teoria de Ginzburg-Landau e Tipos de Supercondutores	10
2.1.2	Modelo de Bean	12
2.1.3	Avalanches de Fluxo Magnético	14
2.2	Crescimento de Filmes Finos	15
2.3	Evaporação Térmica	16
2.4	Modos de Crescimento	17
3	Objetivos	19
4	Materiais e Métodos	20
4.1	Evaporadora do LTFD-GSM (<i>Laboratory for Thin Films Deposition</i>)	20
4.2	Filmes Finos de Chumbo	21
4.3	Caracterização Estrutural	22
4.4	Caracterização Magnética	23
4.4.1	Estação de Imageamento e Princípio de Funcionamento	23
4.4.2	Algoritmo de Conversão	24
5	Resultados	25
5.1	Filmes com Variação da Temperatura de Deposição	25
5.2	Transformações de MOI	31
6	Conclusão	35
A	Implementação de dispositivo para controle de temperatura	37
	Referências	40

1 Introdução

O chumbo é um material supercondutor com temperatura crítica (T_c) de 7,2 K, considerada elevada quando comparada às de outros supercondutores elementares [1]. Na forma de filme fino, abaixo de uma espessura crítica da ordem de algumas centenas de nanômetros, esse material apresenta propriedades de um supercondutor do tipo II, mantendo a mesma temperatura crítica [2, 3]. Essas características, somadas à relativa facilidade de se obter filmes finos de chumbo, tornam-no um interessante candidato para aplicação em dispositivos supercondutores e estudos fundamentais em supercondutividade.

Dentre as aplicações desse material, destaca-se a possibilidade de fabricação de constrições para serem usadas em sensores do tipo μ SQUID (*micron-size Superconducting Quantum Interference Device*), que se valem do efeito Josephson e da quantização do fluxo magnético para medição de campos magnéticos com alta precisão [4, 5]. Devido à baixa temperatura de fusão do chumbo, a técnica de deposição por evaporação térmica pode ser empregada para a fabricação desses filmes. No entanto, trabalhos anteriores mostraram que filmes finos de chumbo crescidos com o substrato mantido à temperatura ambiente apresentam grãos grandes e desconexos devido à alta difusão atômica do material depositado [5]. Assim, a deposição com o substrato mantido em baixas temperaturas é necessária para a obtenção de filmes de alta qualidade, com menor tamanho de grão. A Figura 1(a) mostra uma imagem de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV) de um dispositivo supercondutor (*weak-link*) de chumbo depositado a 77 K, enquanto o painel (b) apresenta o mesmo dispositivo depositado à temperatura ambiente (300 K). Ambos os filmes são cobertos com cromo como proteção contra a oxidação. A partir da estrutura granular do cromo, que depende da estrutura do chumbo sobre o qual ele foi crescido, é possível inferir que o filme depositado em baixa temperatura apresenta maior uniformidade e menor tamanho de grão.

Tendo isso em vista, anteriormente à realização deste trabalho, utilizando a câmara de evaporação térmica do Grupo de Supercondutividade e Magnetismo (GSM) da UFSCar, foram feitas deposições de chumbo a 77 K. Contudo, imagens de microscopia ótica e MEV revelam que os filmes obtidos apresentaram trincas micrométricas como as mostradas nos painéis (c) e (d) da Figura 1. A origem mais provável dessas trincas é a variação de temperatura do substrato durante a deposição, visto que o cadinho no qual o material é aquecido age como uma fonte de calor na câmara e o porta-substratos utilizado era ineficiente no resfriamento. Assim, um novo dedo-frio foi projetado para eliminar os problemas relacionados à estabilidade térmica. Com esse novo porta-substratos, depositamos filmes de chumbo a 77 K e 300 K e comparamos suas microestruturas. Além disso, a fim de se comparar as propriedades supercondutoras desses filmes, utilizamos a técnica de Imageamento Magneto-ótico (MOI). Essa técnica também foi utilizada para o estudo de um outro

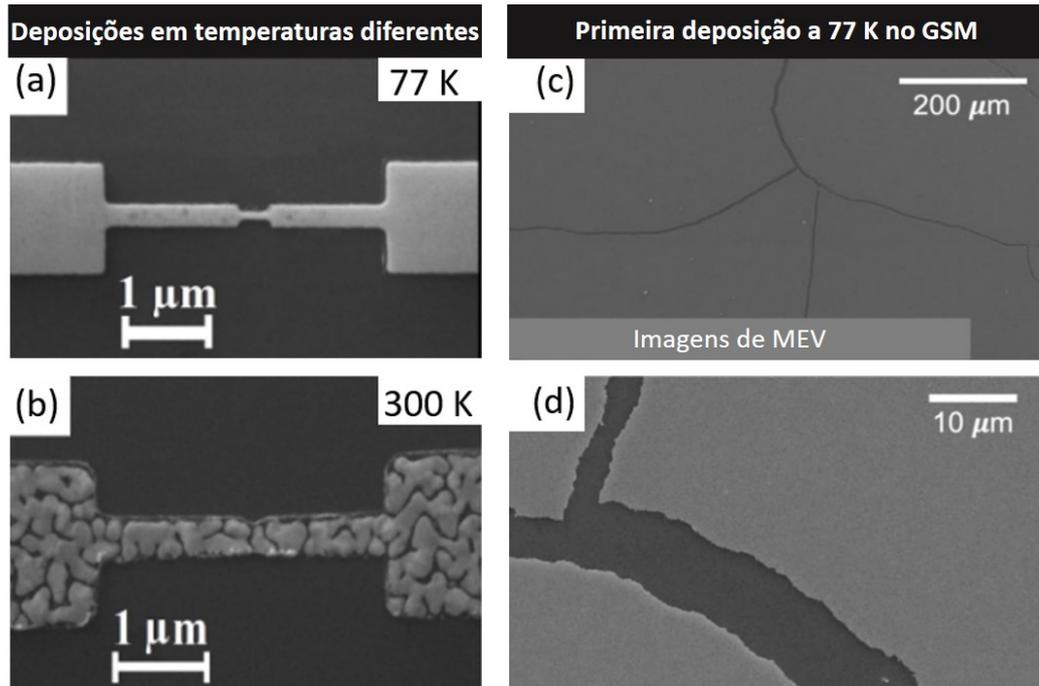


Figura 1: Dispositivo supercondutor (*weak-link*) de Pb depositado a (a) 77 K e (b) temperatura ambiente [5]. (c)-(d) Imagens de MEV de um filme fino de Pb depositado a 77 K com taxa de deposição de 5 \AA/s no GSM. [6].

filme depositado na evaporadora do grupo, no qual utilizamos ferramentas computacionais para obtenção de propriedades como as densidades de fluxo magnético e de corrente, além da magnetização. Para possibilitar futuros estudos da influência da temperatura do substrato durante as deposições de filmes finos, foi desenvolvido um dispositivo porta-substratos acoplável ao dedo-frio e de temperatura controlável, possibilitando deposições entre 77 K e 300 K (Apêndice A).

2 Fundamentos Teóricos

Nesta seção são estabelecidos os conceitos teóricos essenciais para o desenvolvimento deste trabalho, a dizer: aspectos básicos de supercondutividade, crescimento de filmes finos e algumas características de filmes finos supercondutores.

2.1 Aspectos Básicos de Supercondutividade

Em 1911, o físico holandês Heike Kamerlingh Onnes, que 3 anos antes havia conseguido, pela primeira vez, liquefazer hélio, possibilitando estudos de materiais em baixas temperaturas, observou uma queda abrupta da resistência elétrica de uma amostra de mercúrio quando submetida à temperatura de aproximadamente 4,2 K [7, 8], como mostrado na Figura 2. Essa característica de resistividade nula deu os primeiros indícios do que veio a ser conhecido como o fenômeno de supercondutividade.

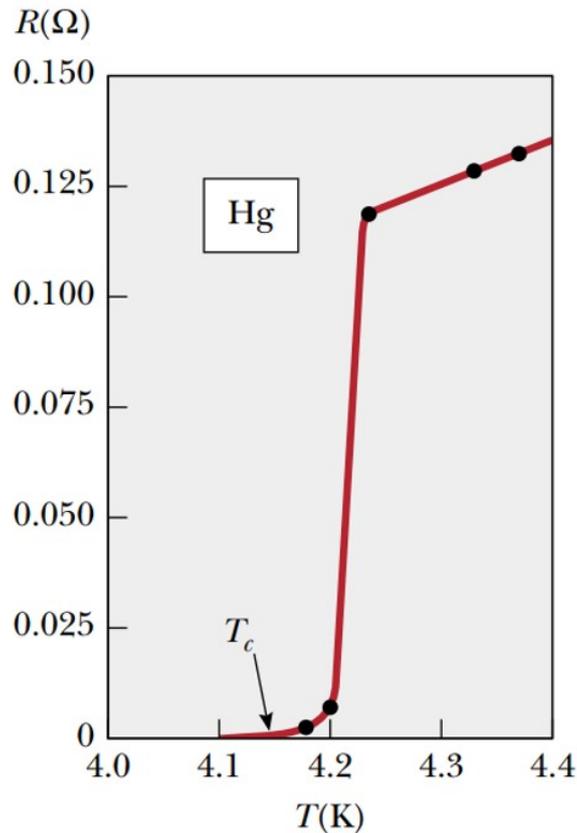


Figura 2: Curva de resistência elétrica em função da temperatura obtida por Onnes para uma amostra de Hg, na qual se verifica $T_c = 4,2$ K [9].

Posteriormente, em 1933, os alemães Walther Meissner e Robert Ochsenfeld verificaram um efeito de blindagem magnética, ou seja, o anulamento da densidade de fluxo magnético (\mathbf{B}) no interior de amostras supercondutoras quando na presença de um campo magnético externo (\mathbf{H}), o então chamado efeito Meissner [10]. Observando a relação constituinte do magnetismo, apresentada na Equação (1), verifica-se que tal efeito é resultado de uma magnetização (\mathbf{M}) que se opõe ao campo \mathbf{H} , devido à circulação das chamadas correntes de blindagem. Contudo, acima de determinado valor de \mathbf{H} , denominado campo magnético crítico (H_c), o material passa por uma transição de fases para o chamado Estado Normal. Assim, o efeito Meissner e a condutividade perfeita abaixo de T_c e H_c caracterizam um material supercondutor.

$$\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + \mathbf{M}) \quad (1)$$

Com o passar dos anos, o mesmo fenômeno foi verificado em outros metais elementares com diferentes valores de T_c . Desde então, surgiram dois principais desafios: compreender o mecanismo que dá origem ao Estado Supercondutor e buscar materiais que apresentam essas características em temperaturas mais elevadas.

2.1.1 Teoria de Ginzburg-Landau e Tipos de Supercondutores

Em 1935, foi proposto pelos irmãos Fritz e Heinz London um modelo capaz de explicar o Efeito Meissner dos materiais supercondutores. Eles mostraram que é possível descrever a ausência de campo magnético no interior de um material supercondutor, na presença de um campo externo, através das chamadas equações de London [11]:

$$\frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} = \frac{n_s e^{*2}}{m^*} \mathbf{E}, \quad (2)$$

$$\nabla \times \mathbf{J} = -\frac{n_s e^{*2}}{m^*} \mathbf{B}, \quad (3)$$

nas quais \mathbf{J} é a densidade de corrente supercondutora, \mathbf{E} é o campo elétrico, n_s é a densidade de portadores de carga supercondutores, e^* e m^* são carga e massa desses portadores, respectivamente. A partir da solução dessas equações, verifica-se que o campo magnético decai exponencialmente em direção ao interior do material, a partir das bordas, com uma profundidade de penetração λ_L , um comprimento característico dado pela Equação (4) [12]. No entanto, o Estado Supercondutor também deve existir na ausência de um campo externo, o que não é contemplado pelas equações de London.

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m^*}{n_s \mu_0 e^{*2}}} \quad (4)$$

No ano de 1950, Vitaly Lazarevich Ginzburg e Lev Davidovich Landau [13, 14] desenvolveram uma teoria de grande valor preditivo para descrever o fenômeno de supercondutividade. Partindo da teoria de transição de fases de segunda ordem de Landau, foi introduzido um parâmetro de ordem imaginário macroscópico $\psi(\mathbf{r})$ para descrever a transição entre o Estado Normal e o Estado Supercondutor:

$$\psi(\mathbf{r}) = |\psi(\mathbf{r})| e^{i\phi(\mathbf{r})}, \quad (5)$$

onde ϕ é um fator de fase.

Para temperaturas acima de T_c tem-se $\psi(\mathbf{r}) = 0$ (Estado Normal). Já para temperaturas menores que T_c , tem-se $\psi(\mathbf{r}) \neq 0$ (Estado Supercondutor). Além disso, a densidade de portadores de carga supercondutores pode ser obtida a partir desse parâmetro pela relação $n_s = |\psi(\mathbf{r})|^2$.

Assim, o sistema pode ser descrito através da expansão da energia livre em termos de $\psi(\mathbf{r})^2$. A minimização dessa energia dá origem a duas equações, as chamadas equações de Ginzburg-Landau [15]:

$$\alpha(T)\psi(\mathbf{r}) + \beta|\psi(\mathbf{r})|^2\psi(\mathbf{r}) + \frac{1}{2m^*} (-i\hbar\nabla + e^* \mathbf{A})^2 \psi(\mathbf{r}) = 0, \quad (6)$$

$$\mathbf{J} = -\frac{ie^*\hbar}{2m^*} (\psi^*\nabla\psi - \psi\nabla\psi^*) - \frac{e^{*2}}{m^*} |\psi|^2 \mathbf{A}, \quad (7)$$

nas quais \mathbf{A} é o potencial vetor magnético, \hbar é a constante de Planck dividida por 2π e $\alpha(T)$ e β são coeficientes fenomenológicos obtidos na expansão. Essas equações introduzem um novo comprimento característico supercondutor, o comprimento de coerência ξ , definido como:

$$\xi(T) = \frac{\hbar}{[2m^* |\alpha(T)|^2]^{\frac{1}{2}}} \propto \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}}, \quad (8)$$

fisicamente relacionado à variação espacial de $\psi(\mathbf{r})$. A partir dos comprimentos λ_L e ξ é obtido o parâmetro de Ginzburg-Landau¹, definido como $\kappa \equiv \lambda_L/\xi$. Esse parâmetro permite a classificação dos supercondutores em dois tipos:

$$\begin{cases} \kappa < 1/\sqrt{2}, \text{ supercondutor do tipo I;} \\ \kappa > 1/\sqrt{2}, \text{ supercondutor do tipo II.} \end{cases}$$

Os supercondutores do tipo I são aqueles que possuem apenas um campo magnético crítico e, conseqüentemente, apresentam apenas os estados Normal e Supercondutor. Já os supercondutores do tipo II, apresentam um campo crítico inferior e um superior (H_{c1} e H_{c2} , respectivamente). Valores de campo entre H_{c1} e H_{c2} dão origem ao chamado Estado Misto, como representado nos diagramas $H - T$ da Figura 3. No Estado Misto, a penetração de fluxo ocorre na forma de vórtices que carregam um *quantum* de fluxo magnético, como mostrado em 1957 por Alexei Alexeevich Abrikosov [18]. Essa penetração pode se dar de forma suave a partir das bordas do material, ou então de forma abrupta com as chamadas avalanches de fluxo [19].

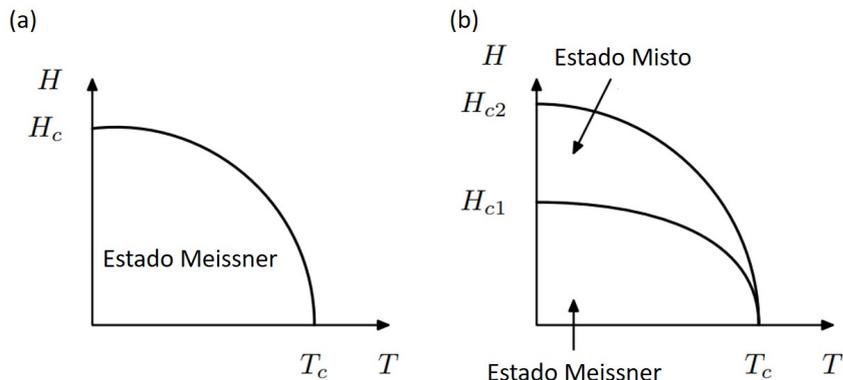


Figura 3: Diagramas $H - T$ para supercondutores do (a) tipo I e (b) tipo II. Adaptado de [12].

¹Através da Teoria de Ginzburg-Landau pode ser obtida uma expressão para a dependência da profundidade de penetração λ com a temperatura, sendo dada por $\lambda(T) = \lambda(0)/\sqrt{1 - T/T_c}$ [16, 17]. A dependência com a temperatura é igual para os dois comprimentos característicos, logo κ é independente dessa variável.

2.1.2 Modelo de Bean

Na presença de um campo magnético externo superior a H_{c1} , os vórtices que penetram um supercondutor do tipo II têm sua dinâmica relacionada às forças de aprisionamento, ou forças de *pinning*, originadas por defeitos, inomogeneidades ou pela própria microestrutura do material, e à Força de Lorentz que surge devido à interação entre o campo magnético dos vórtices e as correntes de blindagem [16]. Uma descrição macroscópica que favorece a compreensão desse processo é possibilitada pelos chamados modelos de estado crítico. Esses modelos partem da hipótese de que nas regiões em que há fluxo penetrado, a densidade de corrente que circula no material possui o valor máximo admitido no Estado Supercondutor, ou seja, a densidade de corrente crítica (J_c).

Dentre esses modelos, o modelo de Bean, proposto em 1962 [20], é o mais simples pois considera que J_c é constante. Assim, considerando essa densidade de corrente e utilizando a Lei de Ampère, cuja representação diferencial é dada por $\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{J}$, é possível determinar um perfil da densidade de fluxo magnético que penetra em um material supercondutor. Por outro lado, na geometria de filme fino, quando a espessura é menor ou comparável à λ_L , os supercondutores do tipo II têm as correntes de blindagem circulando não apenas nas regiões próximas das bordas, mas em todas as regiões até o centro do filme. Nessa geometria, o modelo de Bean ainda prevê que onde há fluxo magnético penetrado, as correntes circulam com valor de J_c . Porém, devido a fortes efeitos de desmagnetização, o campo próximo às bordas é muito maior que o campo externo aplicado [21]. Os perfis teóricos da componente em y da densidade de corrente (J_y) e da densidade de fluxo magnético na direção z (B_z) para um material volumétrico e um filme fino, ambos com largura $2W$, são apresentados na Figura 4.

Outro aspecto importante que pode ser analisado a partir do modelo de Bean é a histerese magnética dos supercondutores do tipo II. Após a penetração do fluxo magnético, o mesmo fica aprisionado no interior do material devido à ancoragem dos vórtices. Com a diminuição de H , os vórtices ficam aprisionados e começam a se desprender gradualmente à partir da borda e a sair do supercondutor. Essa dinâmica dos vórtices dá origem à resposta típica de magnetização, exemplificada na Figura 5.

Ademais, o modelo também possibilita uma aproximação para o valor de J_c a partir das medidas de magnetização, sendo ele proporcional à diferença entre os platôs da curva (ΔM) [16].

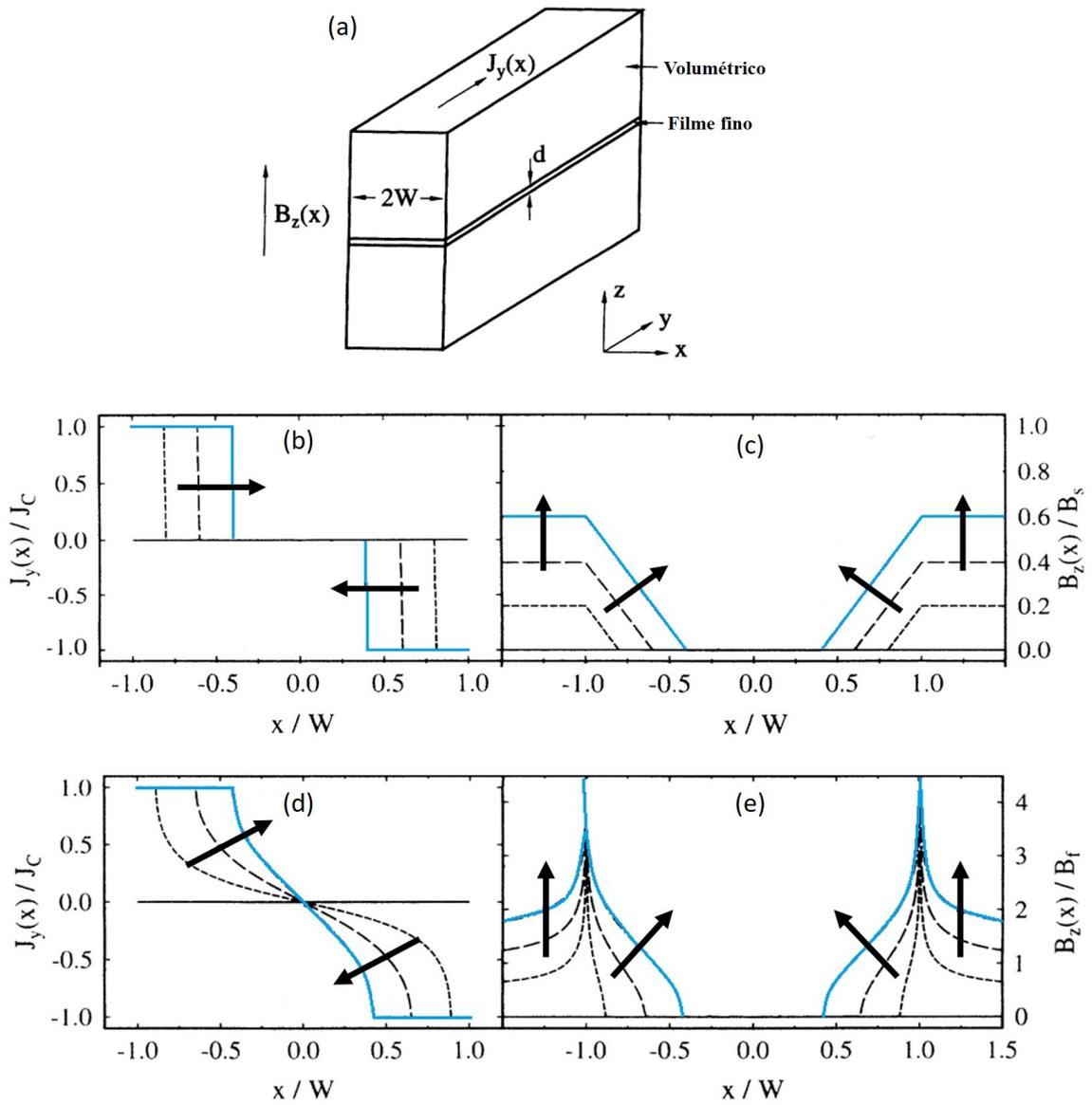


Figura 4: (a) Representação das geometrias e sistema de coordenadas utilizado e os perfis das densidades de corrente normalizada por J_c e de fluxo magnético normalizada com relação ao valor de campo em que a frente de fluxo alcança o centro do material, no caso de (b)-(c) material volumétrico e (d)-(e) filme fino. As setas indicam a direção de evolução do perfil com o aumento do campo aplicado. Adaptado de [21].

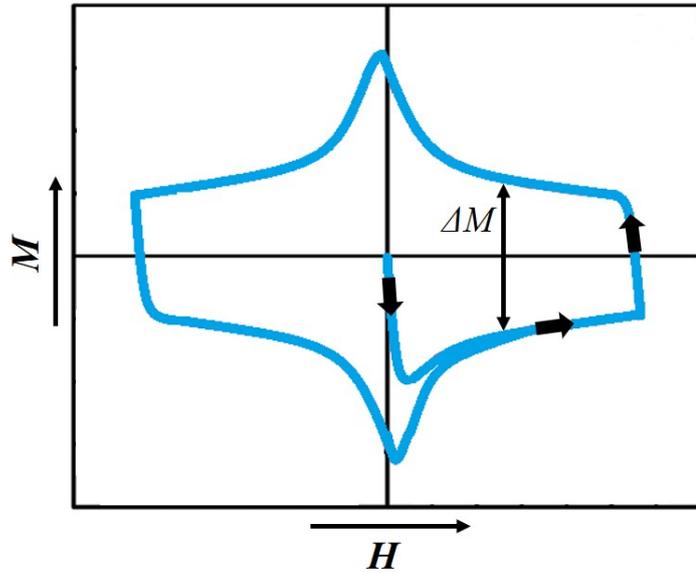


Figura 5: Curva de histerese magnética típica de um supercondutor do tipo II.

2.1.3 Avalanches de Fluxo Magnético

Como mencionado anteriormente, a penetração de fluxo magnético nos filmes supercondutores do tipo II pode se dar de forma suave ou abrupta, como mostrado nos painéis (a) e (b) da Figura 6, respectivamente. Quando ocorre abruptamente, a penetração se dá de forma estocástica através de estruturas dendríticas, denominadas avalanches de fluxo. Como representado na Figura 7, essas avalanches resultam de instabilidades termomagnéticas em um ciclo de retroalimentação: a movimentação de fluxo magnético gera calor (Q), aumentando localmente a temperatura; o aumento local de temperatura reduz a capacidade de *pinning*, resultando na redução de J_c ; com a redução de J_c , tem-se o aumento de \mathbf{B} que, pela lei de Faraday, induz um campo elétrico \mathbf{E} , fazendo com que mais calor seja gerado [22]. O processo é disparado quando a difusividade térmica do material é menor que a difusividade magnética, ou seja, quando o material não é capaz de assimilar o calor liberado. Esse cenário é geralmente obtido para baixas temperaturas e valores moderados de campo aplicado.

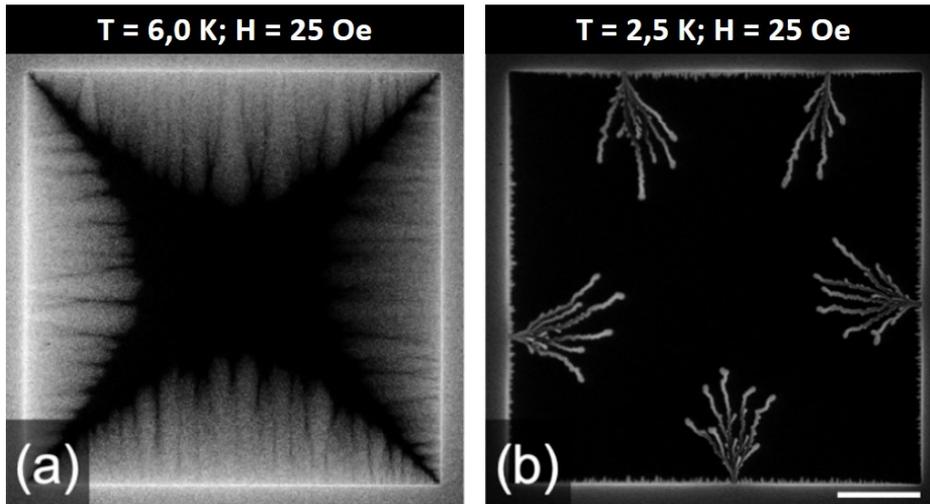


Figura 6: Imagens de magneto-ótica (MO) de um filme de Nb com $H = 25$ Oe para (a) $T = 6,0$ K e (b) $T = 2,5$ K. Adaptado de [23].

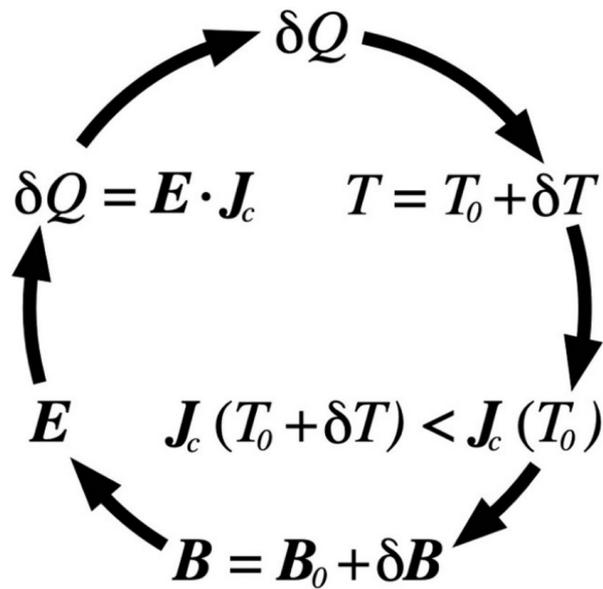


Figura 7: *Loop* de retroalimentação das instabilidades termomagnéticas que dão origem às avalanches de fluxo. Adaptado de [23].

2.2 Crescimento de Filmes Finos

A fabricação de filmes finos pode ser realizada por diversas técnicas que se valem de princípios físicos ou químicos. Dentre as chamadas técnicas de deposição física de vapor (PVD), a evaporação térmica se destaca pelo seu baixo custo e elevadas taxas de deposição [24]. Nesta seção, serão discutidos os principais aspectos envolvidos nessa técnica, além de aspectos gerais de como se dá o crescimento de um filme.

2.3 Evaporação Térmica

Considerada uma das formas mais simples de se obter filmes finos, a técnica de evaporação térmica consiste no aquecimento de um material fonte até sua evaporação ou sublimação, seguida pelo transporte desse vapor em um ambiente de alto vácuo até um substrato no qual ocorre sua condensação [25]. A primeira deposição de filmes por evaporação térmica data de 1857, quando Michael Faraday produziu filmes evaporados em experimentos envolvendo a fusão de metais em atmosferas inertes [26]. Ao longo dos anos, o uso dessa técnica para deposição de filmes metálicos foi especialmente impulsionado por avanços nas tecnologias de vácuo e pelo desenvolvimento de cadinhos de aquecimento por efeito Joule, geralmente feitos de tungstênio [27]. Uma representação esquemática de uma câmara de deposição por evaporação térmica é mostrada na Figura 8.

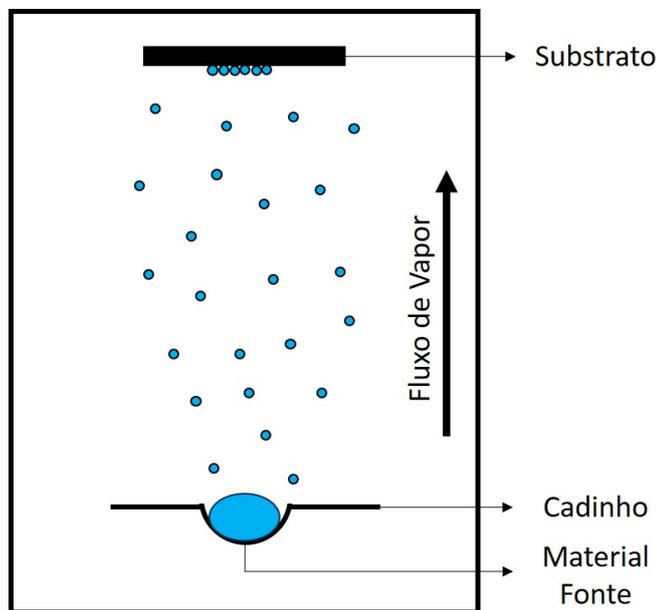


Figura 8: Representação esquemática de uma câmara de evaporação térmica.

A técnica é geralmente empregada para a deposição de filmes metálicos, sendo mais comumente utilizada na deposição de metais de baixo ponto de fusão. Os principais parâmetros que ditam as características dos filmes depositados são a taxa de deposição, a pressão no interior da câmara e a temperatura do substrato. Já o fator determinante para a evaporação ou sublimação do material fonte é a sua pressão de vapor, definida como a pressão na qual o vapor está em equilíbrio termodinâmico com o material no estado sólido ou líquido. A uniformidade dos filmes crescidos depende da geometria da montagem no interior da câmara, ou seja, a posição relativa entre o substrato e o material fonte [28, 29]. Uma estratégia para compreender e prever a dinâmica do fluxo de vapor é considerar uma fonte pontual. Assim, o fluxo de vapor é uma onda esférica que, para distâncias suficientemente grandes e em áreas pequenas, pode ser aproximada por uma onda plana. Além de proporcionar maior uniformidade do filme depositado, o aumento

da distância entre a fonte e o substrato reduz o aquecimento do último via irradiação oriunda do cadinho [30]. Além disso, a técnica apresenta baixo nível de contaminação que se deve ao ambiente de alto vácuo em que se dá o processo de deposição, condição necessária para o aumento do livre caminho médio dos átomos evaporados. A taxa de deposição (R), ou seja, o número de átomos por unidades de área e de tempo, em função da pressão de vapor (p), da massa molecular (m) e da temperatura do material fonte (T), tem seu valor máximo dado por [30, 31, 32]:

$$R = \frac{p(T)}{\sqrt{2\pi mk_B T}} = \frac{p_0 e^{-\frac{\Delta H_e}{RT}}}{\sqrt{2\pi mk_B T}} \quad (9)$$

onde k_B é a constante de Boltzmann, ΔH_e é a entalpia de evaporação, R é a constante universal dos gases e p_0 é uma constante de integração interpretada como uma pressão de referência.

2.4 Modos de Crescimento

O crescimento de filmes finos pode se dar de três modos distintos [31, 32], representados na Figura 9. No primeiro modo, chamado Volmer-Weber, o crescimento se dá na forma de nanoilhas. Os átomos do material evaporado apresentam maior energia de interação entre si se comparada à interação com os átomos do substrato. Assim, são formados pequenos aglomerados que crescem volumetricamente para a formação do filme. No segundo modo, denominado Frank-van der Merwe, o crescimento se dá na forma de camadas. Nesse caso, devido a uma maior interação com os átomos do substrato, os aglomerados atômicos crescem, majoritariamente, de forma bidimensional. Já o último modo, ou modo de Stranski-Krastanov, consiste em uma fusão dos dois modos anteriores. Nesse modo tem-se, inicialmente, o crescimento de algumas monocamadas. Porém, a partir de determinado número de camadas, o crescimento passa a ser na forma de ilhas, devido à redução da interação com os átomos do substrato decorrente do aumento de espessura. Tal modo de crescimento é comum em deposições de metal sobre metal e metal sobre semicondutor [32]. Em suma, nesses casos, inicialmente tem-se o processo de nucleação, no qual átomos adsorvidos no substrato formam os aglomerados, ou núcleos, e se reorganizam com orientação cristalográfica específica. Com a adsorção de mais átomos, tem-se a expansão desses núcleos que se fundem uns aos outros (coalescência) formando um filme contínuo. A partir disso, o processo de crescimento de espessura passa a ocorrer de forma uniforme.

O modo com que o crescimento se dá sobre um substrato pode ser determinado a partir das energias de superfície do substrato, do vapor e do filme (γ_s , γ_v e γ_f , respectivamente). A combinação de subscritos, como os da Figura 10 que apresenta as tensões superficiais no processo de nucleação, se refere à energia superficial na interface das fases correspondentes. A partir da equação de Young para a molhabilidade, tem-se que o crescimento se dá pelo

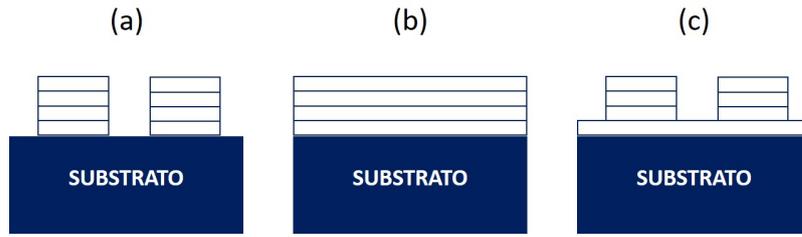


Figura 9: Modos de crescimento de filmes finos: (a) Volmer-Weber, (b) Frank-van der Merwe e (c) Stranski-Krastanov.

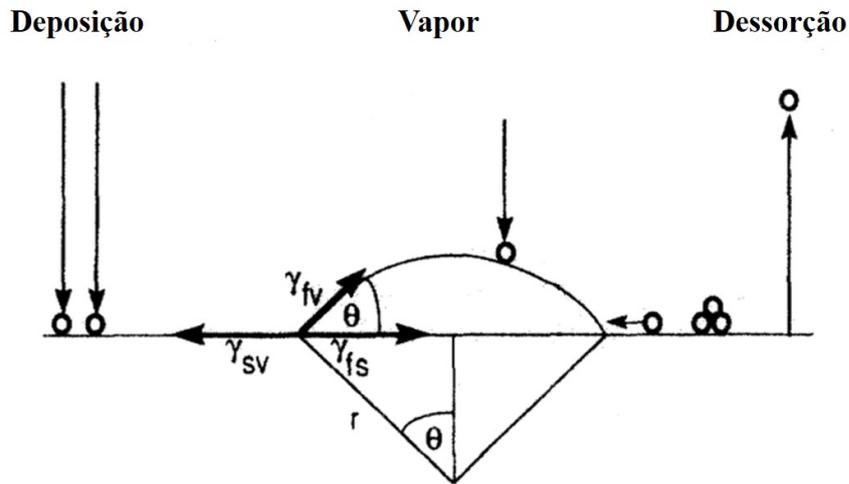


Figura 10: Esquema da nucleação atômica com representação das energias superficiais. Adaptado de [32].

modo de Volmer-Weber quando $\gamma_{sv} < \gamma_{fs} + \gamma_{fv}$ e pelo modo de Frank-van der Merwe quando $\gamma_{sv} \geq \gamma_{fs} + \gamma_{fv}$ [32].

Além das energias superficiais, o modo de crescimento também é determinado pela supersaturação (S), dada pela razão entre a pressão de vapor do material depositado à temperatura T e a pressão de vapor de equilíbrio do substrato à temperatura T_s . Assim, a temperatura do substrato se mostra um parâmetro de grande importância no processo de crescimento dos filmes finos. Com relação à formação da estrutura final do filme, a temperatura do substrato influencia na mobilidade dos átomos adsorvidos na superfície. Dessa forma, o aumento da temperatura do substrato proporciona maior mobilidade, favorecendo a difusão atômica e causando maior coalescência granular, o que dá origem a grãos maiores e mais desconexos. Por outro lado, a redução da temperatura do substrato diminui a mobilidade atômica, mitigando a coalescência e dando origem a estruturas granulares mais finas e percoladas [31, 33, 34]. Além disso, nos cenários de altas taxas de deposição ou elevadas temperaturas do substrato, pode-se ter a reevaporação dos átomos

num processo de dessorção. Para ilustrar o aumento no tamanho dos grãos e da distância intergranular decorrente do aumento da temperatura do substrato, na Figura 11 são mostradas imagens de MEV de filmes de chumbo com espessura de 300 nm, crescidos sobre substratos mantidos em diferentes temperaturas.

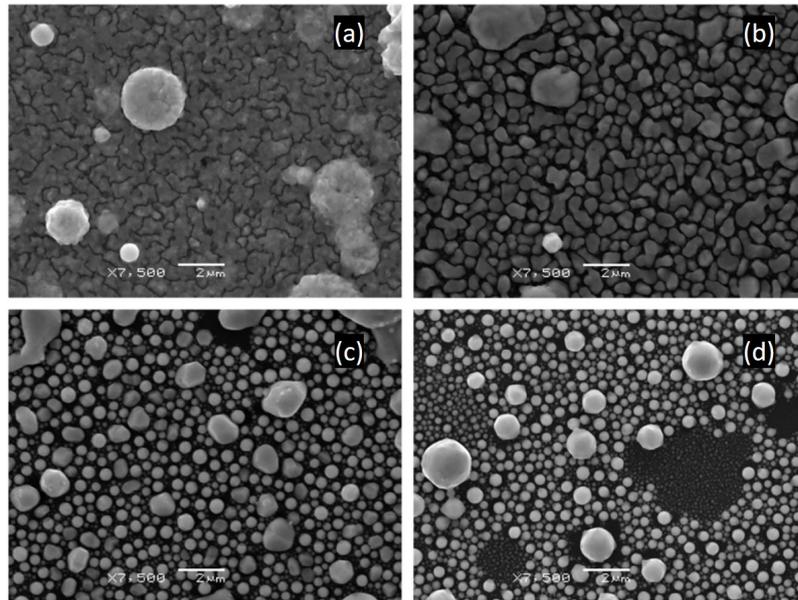


Figura 11: Imagens de MEV de filmes finos de Pb crescidos sobre substratos mantidos a (a) 30 °C, (b) 90 °C, (c) 160 °C e (d) 230 °C. As barras de tamanho representam comprimentos de 2 μm . Adaptado de [35].

No contexto de supercondutividade convencional (ou de baixa temperatura crítica), a estrutura granular de metais se mostra relevante, pois os contornos de grãos agem usualmente como centros de *pinning*. Entretanto, o tamanho desses grãos pode limitar a eficiência do aprisionamento dos vórtices, devido a concorrência entre as forças de *pinning* e a interação repulsiva intervórtice [36, 37]. Assim, a variação do tamanho do grão pode alterar a dinâmica dos vórtices e aumentar o potencial de aplicação de filmes finos metálicos [38].

3 Objetivos

Estudos anteriores mostraram que filmes de chumbo crescidos sobre substratos de silício podem seguir os modos de Volmer-Weber [35] ou de Stranski-Krastanov [39], a depender da técnica de deposição e dos parâmetros termodinâmicos. Embora o modo de crescimento inicial tenha grande relevância na formação do filme, neste trabalho é estudada a influência de diferentes temperaturas do substrato na microestrutura e nas propriedades supercondutoras. Assim, este trabalho possui dois objetivos principais:

(i) Crescer filmes de chumbo sobre substratos de silício mantidos em diferentes temperaturas (77 K e 300 K) para estudo das relações entre microestrutura e propriedades

supercondutoras, através das técnicas de MEV e MOI;

(ii) Realizar transformações de imagens magneto-ópticas para o estudo quantitativo das densidades de fluxo magnético e de corrente, bem como o estudo qualitativo da magnetização de um filme de chumbo.

4 Materiais e Métodos

Nesta seção serão apresentadas informações sobre as amostras estudadas, bem como sobre as técnicas e aparatos experimentais empregados para suas fabricações e caracterizações.

4.1 Evaporadora do LTFD-GSM (*Laboratory for Thin Films Deposition*)

Os filmes estudados neste trabalho foram crescidos na câmara de deposição do GSM (Figura 12(a)), que também é um dos objetos de estudo. O aparato foi projetado e implementado por integrantes do grupo para a deposição de filmes de Pb, Ge, Sn e Al, tendo os primeiros filmes sido depositados no ano de 2018 [40]. O sistema conta com uma fonte de corrente de até 100 A responsável pelo aquecimento do cadinho via efeito Joule e um conjunto de bombas mecânica e turbomolecular capaz de alcançar pressões numa faixa de 10^{-6} a 10^{-7} torr. Embora muitas amostras tenham sido obtidas através desse aparato, ele se mostrou ineficiente na deposição de filmes finos de chumbo em baixa temperatura² devido, principalmente, à baixa estabilidade térmica do porta-substratos.

Com isso, um novo porta-substratos, ilustrado na Figura 12(b), foi desenvolvido para possibilitar o crescimento de filmes de chumbo de alta qualidade. Assim como na versão anterior, o novo porta-substratos admite a inserção de nitrogênio líquido em um orifício superior para o seu resfriamento. A extremidade em que o substrato é montado (dedo-frio) consiste em um copo feito de cobre e a parte superior consiste em um sistema de três tubos concêntricos de aço inoxidável: no tubo mais interno é inserido nitrogênio líquido, no segundo tubo ocorre a saída de gás nitrogênio evaporado e entre o segundo tubo e o tubo mais externo há vácuo para o isolamento térmico do sistema. A Figura 12(c) mostra uma fotografia da câmara com o novo porta-substratos instalado.

²Para deposições em temperatura ambiente, os filmes apresentaram uma boa qualidade e permitiram realizar estudos interessantes como, por exemplo, verificar a variação das propriedades supercondutoras em um filme de Pb com gradiente de espessura de 90 nm a 154 nm em uma das dimensões, ao longo de 7 mm de comprimento [41].

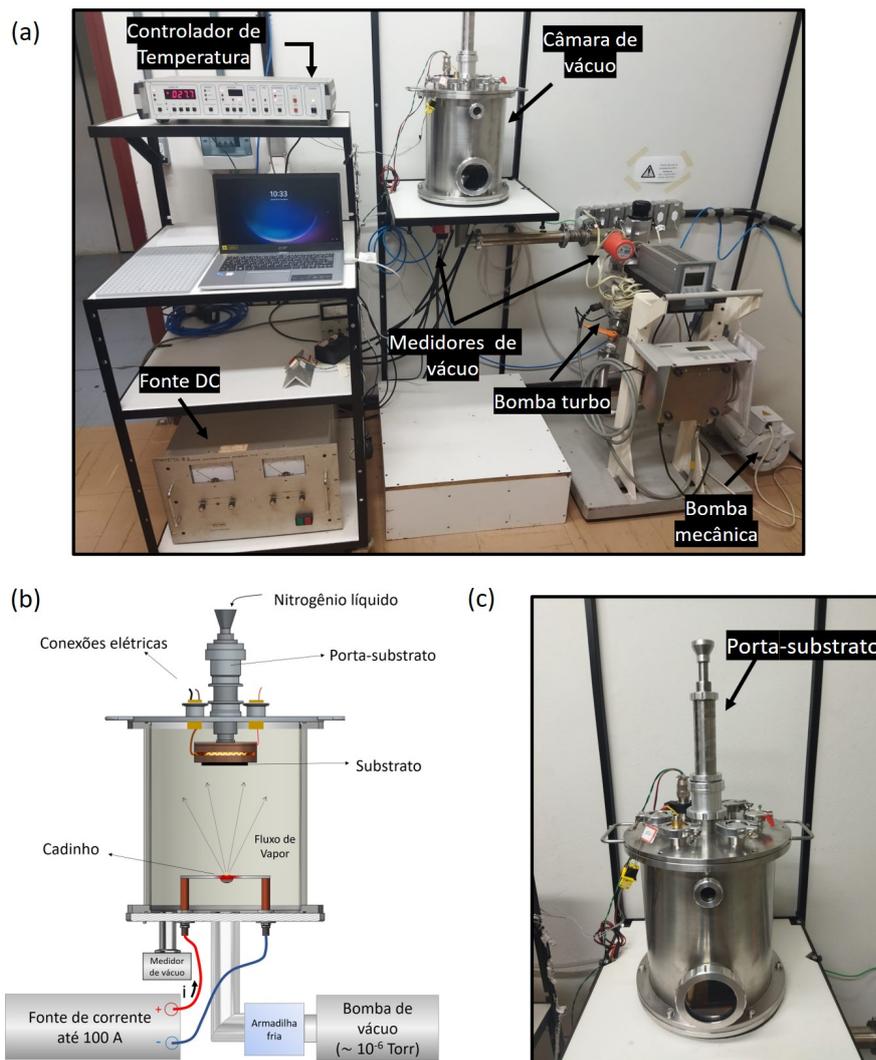


Figura 12: (a) Fotografia do aparato experimental completo no LTFD, (b) representação esquemática e (c) fotografia da câmara com a segunda versão do porta-substratos.

4.2 Filmes Finos de Chumbo

No presente trabalho, foram estudados três filmes de chumbo, material que possui rede cristalina cúbica de face centrada (FCC) e parâmetro de rede $a = 4,95 \text{ \AA}$ [42]. Imagens de microscopia ótica desses filmes são apresentadas na Figura 13. O primeiro deles, a partir do qual foram realizados os estudos quantitativos e qualitativos através das transformações das imagens de MO, é identificado como PbAl300K. Ele consiste em um filme de chumbo de 140 nm de espessura, coberto por uma camada de 5 nm de alumínio, crescido sobre um substrato de silício mantido à temperatura ambiente. As outras duas amostras estudadas são filmes de chumbo de 100 nm de espessura cobertos por 20 nm de germânio (valores estimados através da distância fonte-substrato e da massa de material evaporado). Esses filmes são identificados como PbGe77K e PbGe300K, tendo sido crescidos com os substratos mantidos a 77 K e 300 K, respectivamente. Todos os filmes foram crescidos em ambiente de alto vácuo, com pressões de base de aproximadamente

10^{-6} torr. As camadas de alumínio e de germânio foram depositadas como uma proteção das superfícies dos filmes contra oxidação, dado que o chumbo oxida muito rapidamente quando exposto ao ar. Para fins de comparação, tanto o Si quanto o Ge apresentam redes cristalinas do tipo diamante, com parâmetros de rede 5,43 Å e 5,66 Å, respectivamente [42].

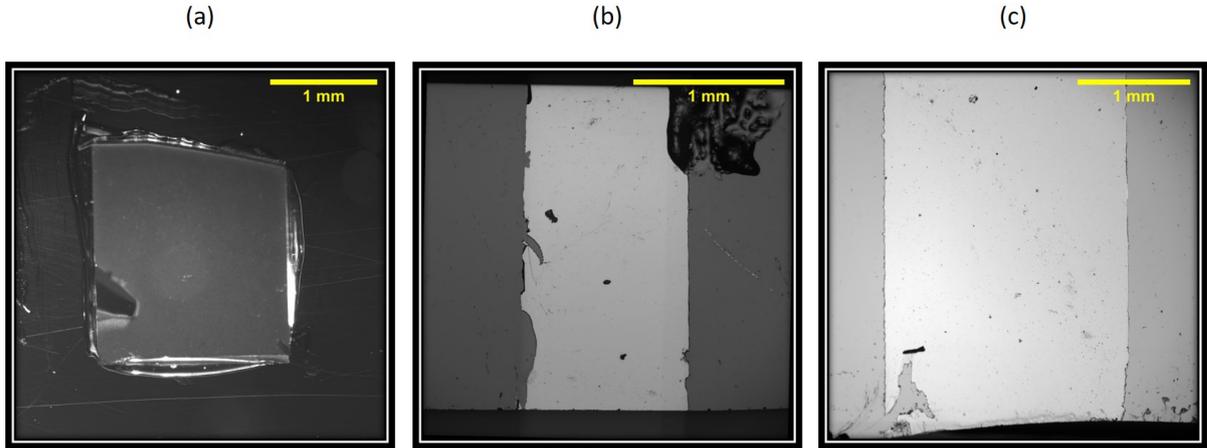


Figura 13: Imagens de microscopia ótica das amostras (a) PbAl300K, (b) PbGe77K e (c) PbGe300K.

As amostras PbGe77K e PbGe300K, utilizadas para o estudo da influência da temperatura do substrato na deposição, foram as primeiras amostras obtidas com o novo porta-substratos. No período de realização deste trabalho, durante a implementação desse novo sistema, houve alguns contratemplos como falhas na bomba de vácuo turbomolecular utilizada na evaporadora e vazamentos entre as partes do porta-substratos, sendo necessários ajustes mecânicos e ressoldagem para mitigar esse problema. Assim, não foi possível realizar a deposição de filmes em diferentes temperaturas, bem como um estudo de reprodutibilidade dos resultados que serão apresentados na Seção 5.1.

4.3 Caracterização Estrutural

A caracterização estrutural dos filmes estudados foi realizada através da técnica de MEV, utilizando o equipamento Philips XL-30 FEG (*Field Emission Gun*), disponível no Laboratório de Caracterização Estrutural (LCE) do Departamento de Engenharia de Materiais (DEMa) da UFSCar. Neste trabalho, foram obtidas imagens de elétrons secundários (SE), ou seja, elétrons de baixa energia (< 50 eV) que são espalhados na interação entre um feixe de elétrons incidente e a amostra [43]. Tais imagens revelam aspectos da superfície da amostra com resolução espacial nanométrica.

4.4 Caracterização Magnética

A maior parte da caracterização magnética das amostras estudadas neste trabalho foi realizada através da técnica de MOI. Essa técnica permite visualizar a distribuição de fluxo magnético em uma amostra supercondutora submetida a um campo externo com resolução na escala micrométrica. Além disso, foram utilizados resultados de um magnetômetro MPMS-5S (*Magnetic Properties Measurement System*) da Quantum Design, que utiliza um sensor SQUID, para comparação de medidas de magnetização da amostra PbAl300K.

A seguir, estão apresentados detalhes sobre o princípio de funcionamento da técnica de MOI, o aparato experimental e o tratamento que é dado aos resultados obtidos.

4.4.1 Estação de Imageamento e Princípio de Funcionamento

A técnica de MOI se vale do efeito Faraday magneto-ótico para possibilitar a visualização de uma distribuição de campo magnético. O efeito consiste na rotação do ângulo de polarização de luz linearmente polarizada, quando essa atravessa um material Faraday-ativo [44]. O ângulo de rotação é proporcional à espessura do material atravessado e à intensidade do campo magnético, sendo o fator de proporcionalidade dado pela constante de Verdet (característica do material).

Na Figura 14, é mostrada uma representação esquemática do aparato experimental e uma fotografia da estação de MOI do GSM. Nessa técnica, a amostra é montada sobre um dedo-frio resfriado com hélio líquido que fica armazenado em um tanque Dewar. Para que não haja transferência de energia por irradiação, condução e convecção, uma blindagem é colocada ao redor do dedo-frio e o criostato no qual ele é inserido é evacuado por uma bomba turbomolecular. No entorno do criostato, há um par bobinas simétricas alimentado por uma fonte de corrente para geração do campo magnético ao qual a amostra é submetida. Com relação ao sistema ótico, o aparato conta com uma fonte luminosa e polarizadores. Quando o feixe de luz polarizada atinge o semi-espelho central, a fração da luz que é refletida em direção à amostra atravessa uma camada magneto-ótica (MOL) posicionada sobre ela. Essa camada é necessária pois, em geral, os materiais supercondutores não apresentam constantes de Verdet significativas. Junto à MOL há uma camada de aproximadamente 100 nm de alumínio que age como um espelho, responsável por refletir o feixe de luz, que passa novamente pela MOL e segue para o analisador. Por fim, há uma câmera CCD que se vale do efeito fotoelétrico para a geração de imagens que possibilitam a verificação das regiões em que há campo penetrado com resolução espacial micrométrica e temporal de centenas de milissegundos.

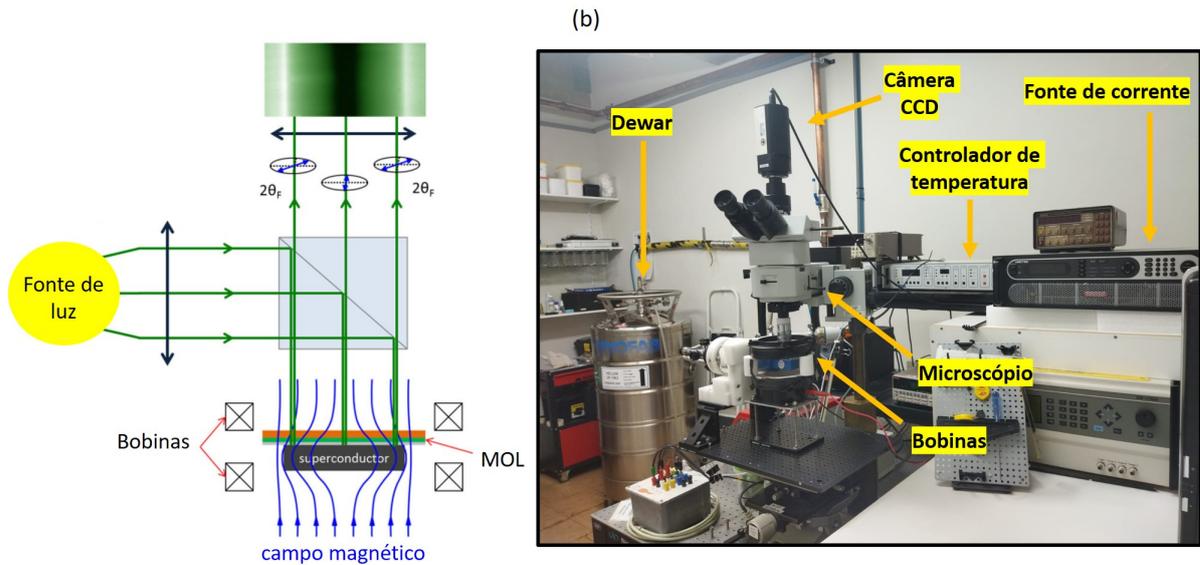


Figura 14: (a) Esquema de funcionamento da técnica [19] e (b) estação de MOI do GSM.

4.4.2 Algoritmo de Conversão

As imagens de MO obtidas, a princípio, não possuem valor quantitativo, dado que representam apenas medidas de intensidade luminosa (I). Assim, é necessário que essas imagens sejam processadas a fim de se extrair grandezas físicas de interesse. Nesse sentido, foi desenvolvido um algoritmo no software MATLAB que realiza a calibração e transformação da intensidade em cada pixel da imagem em unidades de campo magnético [40]. Para realização dessa calibração, são tomadas imagens da amostra no Estado Normal, variando-se o campo aplicado. Com isso, considera-se uma dependência quadrática de I com B_z [44] e o processo de se obter a densidade de fluxo magnético resume-se na inversão de uma função parabólica através da expressão:

$$B_z(x, y) = \frac{-b(x, y) + \sqrt{b^2(x, y) - 4a(x, y) [c(x, y) - I(x, y)]}}{2a(x, y)}, \quad (10)$$

onde a , b e c são coeficientes obtidos a partir do procedimento de calibração. Para a transformação de um conjunto de imagens, a calibração e a subsequente transformação são feitas para cada pixel de cada imagem, como representado de forma simplificada na Figura 15.

Adicionalmente, a partir de B_z , pode-se determinar a densidade de corrente J , realizando uma inversão direta da lei de Biot-Savart [45]. Assim, obtém-se as componentes J_x e J_y , e pode-se construir tanto os perfis de corrente ao longo da amostra quanto mapas vetoriais indicando a circulação da corrente.

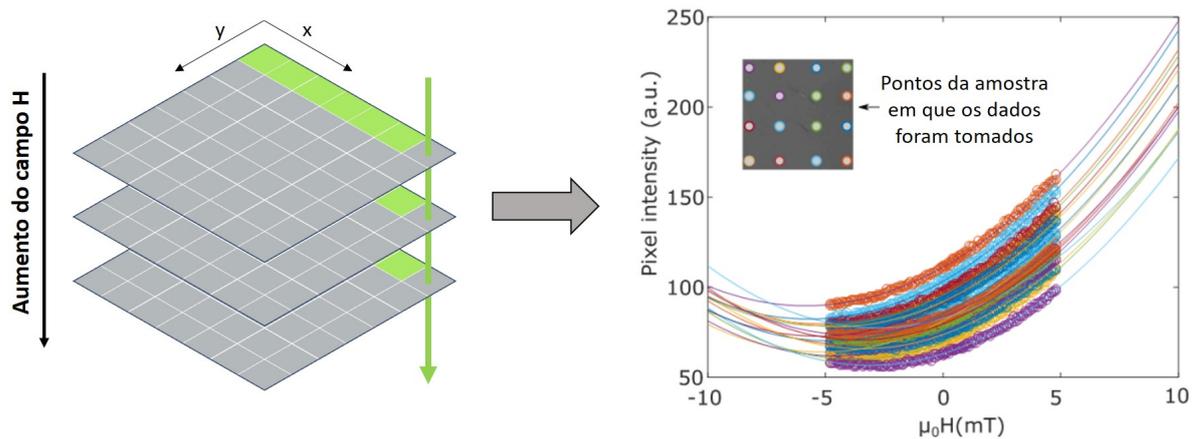


Figura 15: Processo de calibração para transformação de intensidade luminosa em densidade de fluxo magnético a partir de resultados do imageamento magneto-ótico. Adaptado de [40].

5 Resultados

Assim como estabelecido nos objetivos deste trabalho, os resultados serão divididos em três partes. Primeiramente, serão apresentados e discutidos os resultados preliminares das deposições de filmes com substratos mantidos a 77 K e 300 K. Em seguida, será apresentado o dispositivo projetado para possibilitar a variação e controle de temperatura para outros valores, bem como os testes realizados. Por fim, serão apresentados resultados de transformações de imagens de MO para um filme de chumbo, a fim de verificar o potencial dessa técnica experimental na caracterização magnética de materiais supercondutores.

5.1 Filmes com Variação da Temperatura de Deposição

Como é possível verificar na Figura 13(b), o filme depositado com o substrato a 77 K, diferentemente das deposições realizadas anteriormente pelo grupo, não apresentou trincas. Na Figura 16, são apresentadas as imagens de MEV dos filmes depositados em diferentes temperaturas. Como os filmes são cobertos por uma camada de germânio, os grãos que podem ser vistos nessas imagens são os grãos desse material. No entanto, as características desses grãos estão também relacionadas à microestrutura do chumbo que está por baixo. Na deposição realizada com o substrato mantido a 77 K, é possível verificar que os grãos resultantes são pequenos e uniformemente distribuídos. Por outro lado, os grãos da amostra crescida a 300 K apresentam tamanhos maiores e são consideravelmente disformes. A partir dos histogramas dispostos na Figura 17, que apresentam medidas dos tamanhos de 150 grãos de cada amostra, verifica-se que os grãos da amostra crescida a 300 K são, em média, aproximadamente 11 vezes maiores (em área) que os grãos obtidos a 77 K. Além disso, a diferença na uniformidade dos grãos pode ser identificada pelo fato

de que o histograma para a amostra crescida em baixa temperatura é melhor ajustado por uma distribuição normal (gaussiana). Essas diferenças no aspecto granular das camadas protetivas dos filmes é um indicativo de maior homogeneidade do filme de chumbo crescido em baixa temperatura.

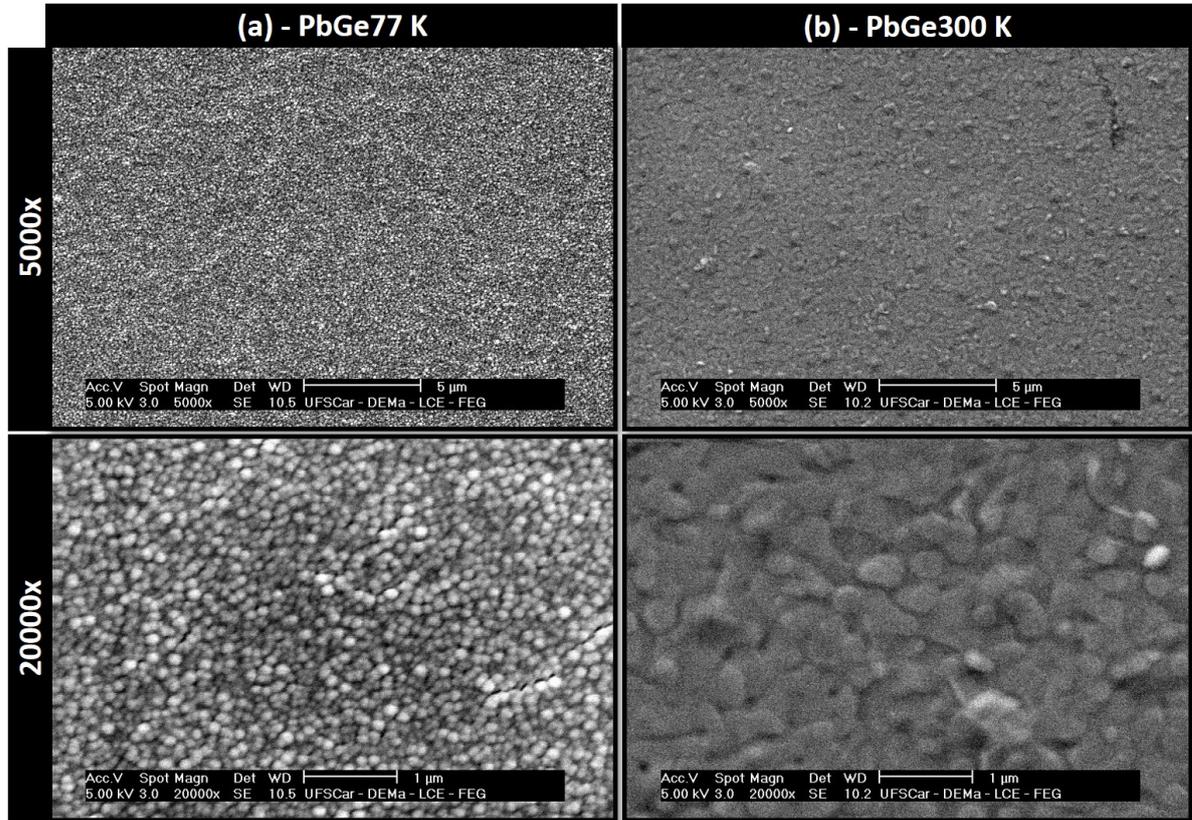


Figura 16: Imagens de MEV das amostras (a) PbGe77K e (b) PbGe300K com magnificações de 5000x e 20000x.

Resultados do imageamento magneto-ótico com campo aplicado de 5, 25 e 50 Oe, com as amostras resfriadas à temperatura reduzida $T/T_c = 0,5$, são apresentados na Figura 18. Nessas imagens, que foram submetidas ao procedimento de calibração e transformação apresentado na Seção 4.4, é possível verificar uma característica inerente à técnica: a movimentação dos domínios magnéticos da MOL que se manifestam na forma de triângulos nas imagens. Embora haja uma diferença evidente entre a qualidade das bordas das amostras comparadas, observa-se que, para os mesmos valores de campo aplicado, a penetração da frente de fluxo avança mais em direção ao centro do filme que foi crescido a 77 K, indicando que o mesmo possui menor valor de J_c .

Adicionalmente, foram tomados os perfis de B_z nas mesmas condições de temperatura e campo, obtidos através da média calculada sob as faixas azuis demarcadas nas imagens de MO transformadas. Esses perfis estão dispostos na Figura 19, na qual verifica-se o comportamento previsto pelo modelo de Bean. Nas regiões centrais dos filmes, onde B deveria se anular, tem-se as assinaturas dos domínios magnéticos da MOL.

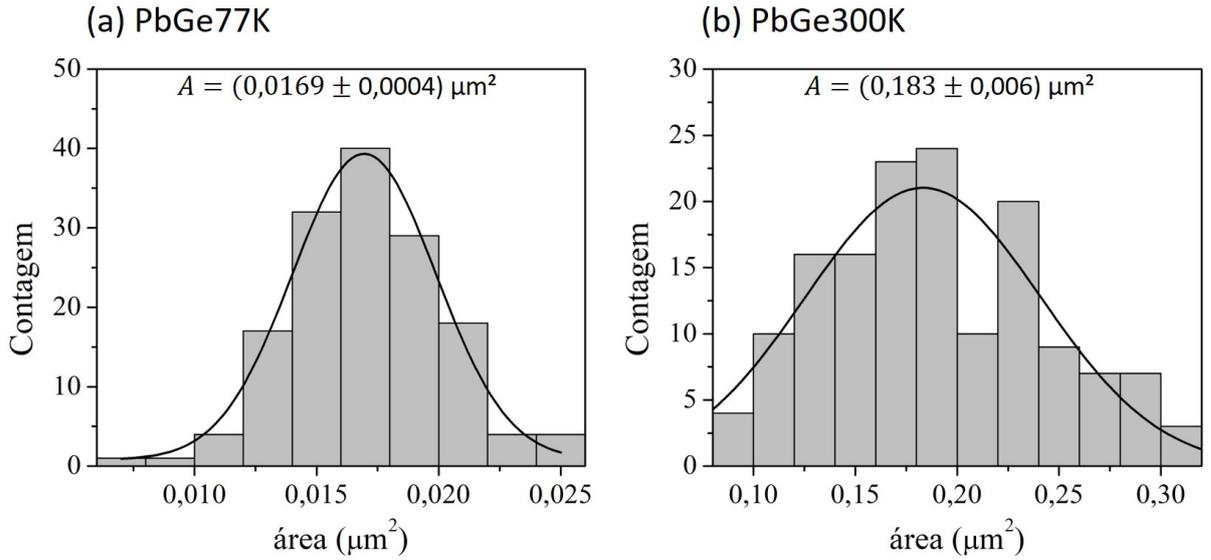


Figura 17: Histogramas de tamanho dos grãos das amostras (a) PbGe77K e (b) PbGe300K, medidos nas imagens de MEV com magnificações de 20000x. As médias obtidas são dadas pelos valores de A na figura.

A partir das distribuições de B_z obtidas via MOI e da Equação (1), foram calculadas as magnetizações normalizadas em relação ao seus valores máximos. Após um procedimento de ZFC (*Zero Field Cooling*), que consiste no resfriamento sem campo aplicado, e mantendo-se a temperatura reduzida constante, as amostras foram submetidas a ciclos completos de variação de campo, com amplitude de 100 Oe e passos de 5 Oe. Com isso, foram construídas as curvas de magnetização dispostas na Figura 20(a), nas quais pode-se visualizar o comportamento típico de histerese. Já na Figura 20(b), são mostradas curvas de magnetização em função da temperatura reduzida obtidas após um procedimento de ZFC e com campo aplicado de 10 Oe. Nessas curvas, observa-se a transição para o estado normal quando $T = T_c$. A partir dos resultados numéricos obtidos para as curvas de $M \times H$, verificamos que $\Delta M_{300K} \approx 2,6 \times \Delta M_{77K}$ (para $H = 0$). Assim, as diferenças nos platôs das curvas de magnetização também são indicativos de que o filme depositado a 77 K possui menor valor de J_c .

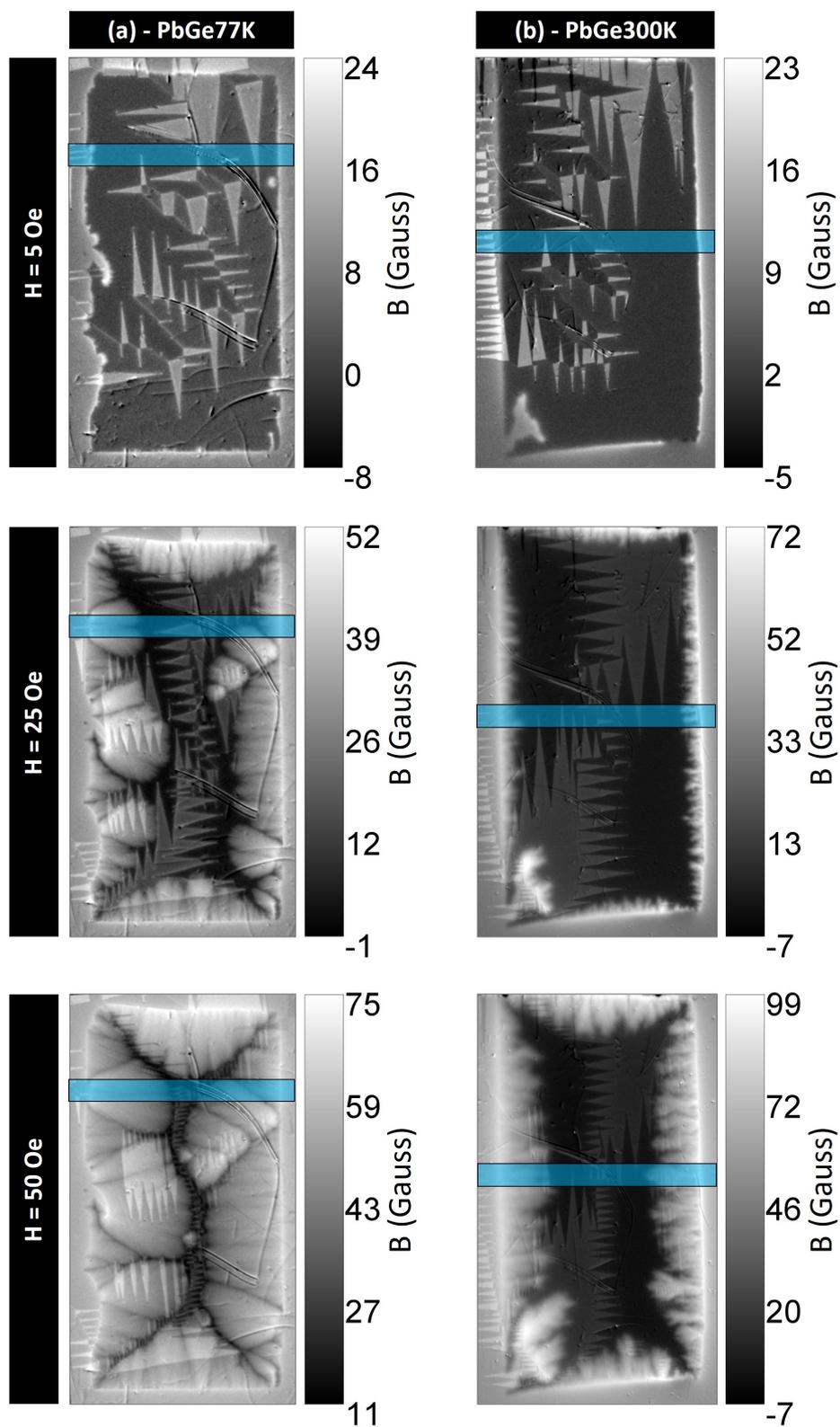


Figura 18: Imagens de MO das amostras (a) PbGe77K e (b) PbGe300K com campo aplicado de 5,0 Oe, 25,0 Oe e 50,0 Oe. Todas as imagens foram tomadas à temperatura reduzida $T/T_c = 0,5$.

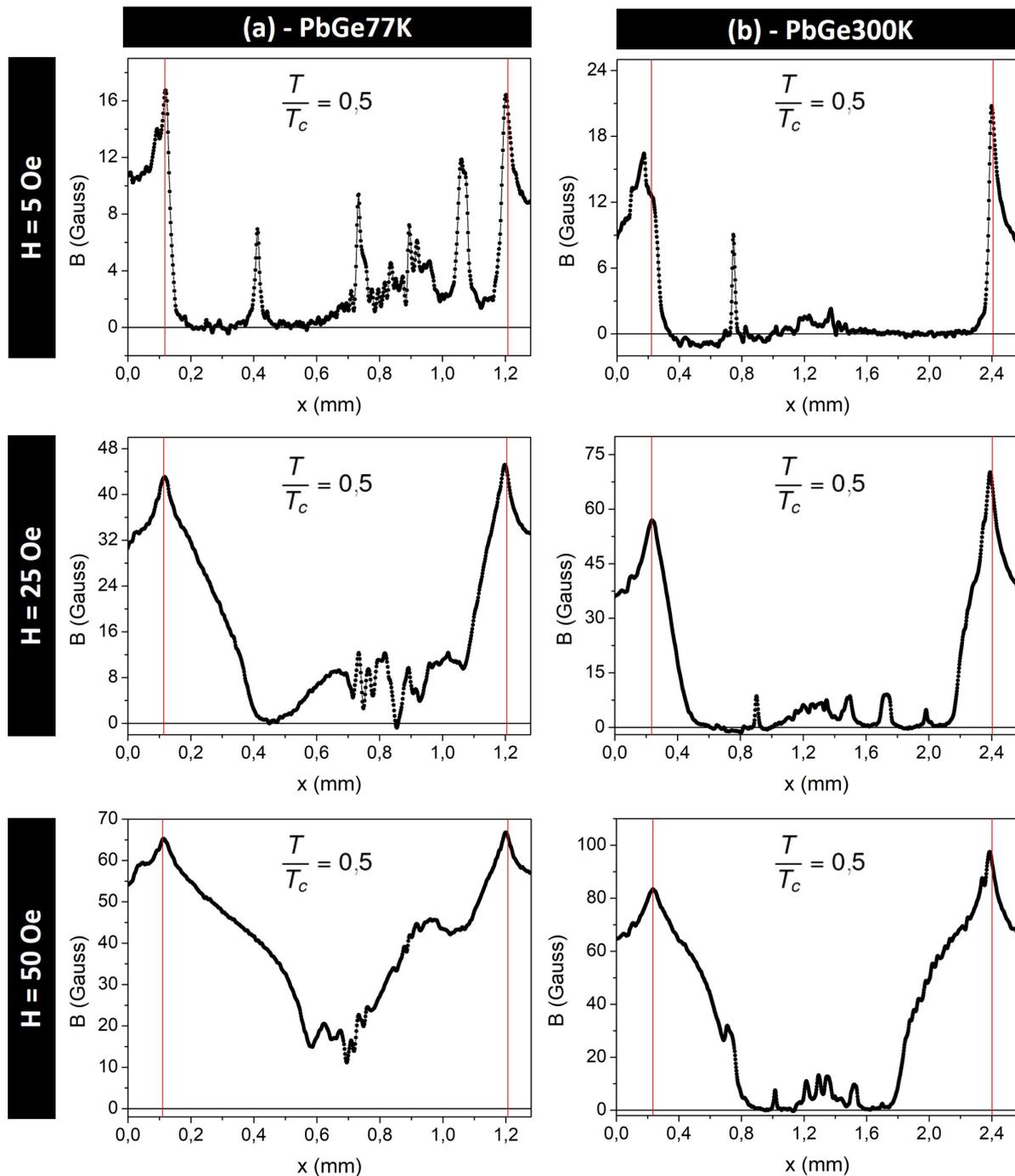


Figura 19: Perfis de B das amostras (a) PbGe77K e (b) PbGe300K com campo aplicado de 5,0 Oe, 25,0 Oe e 50,0 Oe, tomados como a média sobre as faixas azuis das imagens de MO da Figura 18. As linhas vermelhas delimitam as bordas das amostras.

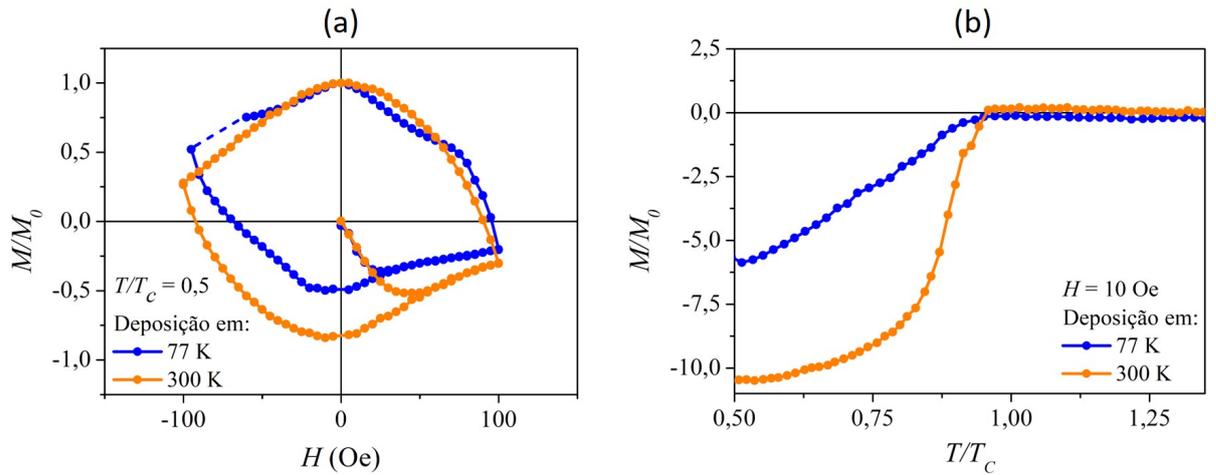


Figura 20: Curvas de magnetização normalizada (a) em função do campo aplicado com $T/T_c = 0,5$ e (b) em função da temperatura reduzida após procedimento ZFC e com $H = 10$ Oe. As curvas azuis correspondem ao filme crescido a 77 K e as laranjas ao filme crescido a 300 K.

Embora a discussão realizada na Seção 2.4 indique uma tendência de aumento de J_c com a redução do tamanho dos grãos, os resultados obtidos se opõem à essa previsão. Uma possível explicação para isso parte do fato de que os vórtices que penetram um supercondutor do tipo II se organizam em uma rede periódica devido à interação repulsiva entre si [18]. No caso de supercondutores volumétricos, essa interação tem comprimento típico na ordem de λ . Contudo, no caso de filmes finos, devido à influência da geometria, essa interação se dá com distância típica $\Lambda = 2\lambda^2/d$, onde d é a espessura do filme [46]. Para uma amostra de chumbo similar às nossas [17], estima-se que $\lambda \approx 122$ nm, à temperatura de zero Kelvin. Especificamente nesse caso, em que as espessuras dos filmes são de 100 nm, tem-se $\Lambda \approx 298$ nm. Por outro lado, os diâmetros médios (D) dos grãos dos nossos filmes, cujos contornos agem como centros de aprisionamento de vórtices, são $D_{77K} \approx 147$ nm e $D_{300K} \approx 483$ nm, ou seja, $D_{77K} < \Lambda < D_{300K}$. Dessa forma, os centros de aprisionamento do filme crescido a 77 K podem ocasionar uma distribuição de vórtices com distância inferior à distância típica calculada, o que resulta em uma maior força de repulsão entre vórtices e uma configuração de energia superior àquela encontrada no filme crescido a 300 K.

Além disso, como foram analisadas apenas duas amostras, mais deposições deverão ser realizadas a fim de se verificar a reprodutibilidade desses resultados. Para a continuação desse estudo, alguns passos a serem seguidos para melhoria das análises e dos processos são: (a) deposição de filmes de chumbo sem camada protetora de germânio e caracterização microestrutural e magnética logo após a retirada do interior da câmara de evaporação; (b) deposição do chumbo em diferentes temperaturas, com posterior deposição do germânio a 300 K; (c) deposição de uma fina camada (2 nm) de germânio antes do chumbo para aumento da adesão dos filmes ao substrato; (d) variação de outros

parâmetros na deposição e nos processos que a precedem, como a taxa de evaporação e o método de limpeza dos substratos.

5.2 Transformações de MOI

Recentemente, o grupo de pesquisas tem se dedicado à obtenção de dados quantitativos a partir da técnica de MOI. Para a análise de um conjunto mais completo de resultados obtidos via MOI e comparação com resultados de técnicas de magnetometria já estabelecidas, estudamos o filme de chumbo PbAl300K. Inicialmente, as imagens que foram coletadas no experimento foram submetidas ao procedimento de calibração e de transformação. A comparação entre os dados crus (sem tratamento) e os dados após esse procedimento é apresentada na Figura 21. A partir dos perfis obtidos nessas imagens, é possível verificar uma inclinação significativa nos dados não-nulos obtidos nas regiões mais internas da imagem crua. Esse problema está relacionado à iluminação inhomogênea, mas é superado pelo processo de calibração. Para o estudo realizado, foram analisadas imagens obtidas às temperaturas de 4,0, 4,5 e 6,0 K, tendo a amostra sido submetida a ciclos de campo com amplitude máxima de 150 Oe. No experimento realizado com a amostra a 4,0 K, foram observadas avalanches de fluxo a partir de 34 Oe. Já à temperatura de 4,5 K, avalanches foram disparadas a partir de 50 Oe. Para a temperatura de 6,0 K, a penetração de fluxo se deu de forma suave para o ciclo de campo aplicado. Na Figura 22, estão mostradas as imagens de MO e os perfis de B para as três temperaturas estudadas, para o mesmo valor de H . Nos perfis obtidos é possível verificar a penetração de fluxo prevista pelo modelo de Bean, com exceção do pico observado no perfil da Figura 22(a) que corresponde à ocorrência de uma avalanche de fluxo magnético. Além disso, é possível verificar a redução de J_c , devido ao aumento da temperatura, através da penetração de fluxo observada para $T = 6,0$ K, dado que, para esses valores de temperatura e campo aplicado, a frente de fluxo magnético já alcança a região central da amostra.

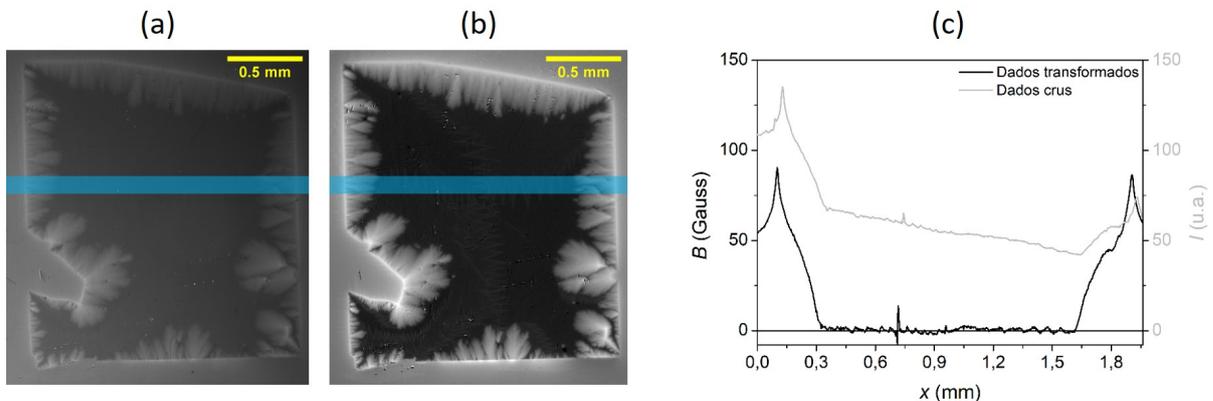


Figura 21: Imagens de MO à temperatura de 4,5 K e campo $H = 40$ Oe (a) sem tratamento e (b) após procedimento de transformação. No painel (c) são apresentados os perfis obtidos sobre as faixas azuis.

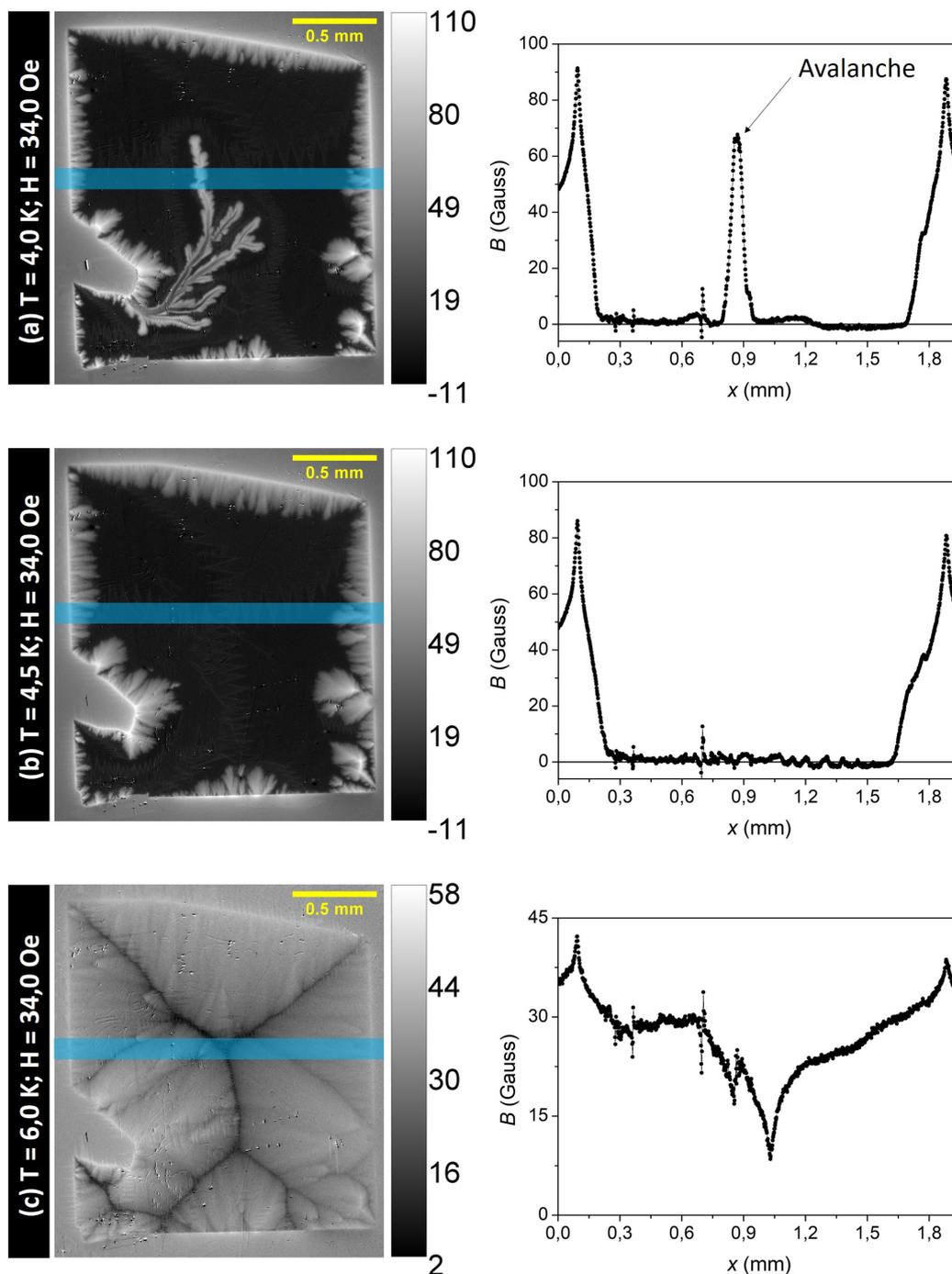


Figura 22: Imagens de MO e perfis de B com $H = 34$ Oe e temperatura de (a) 4,0 K, (b) 4,5 K e (c) 6,0 K. Os perfis foram tomados como as médias calculadas sobre as faixas azuis nas imagens.

Utilizando a relação constitutiva representada pela Equação (1), foram obtidas as curvas de magnetização normalizada em função do campo H para as três temperaturas analisadas. Essas curvas foram comparadas qualitativamente com as curvas obtidas através de magnetometria convencional, aqui referidas como curvas SQUID. Na Figura 23, as curvas obtidas via MOI são apresentadas em azul, enquanto as curvas SQUID são

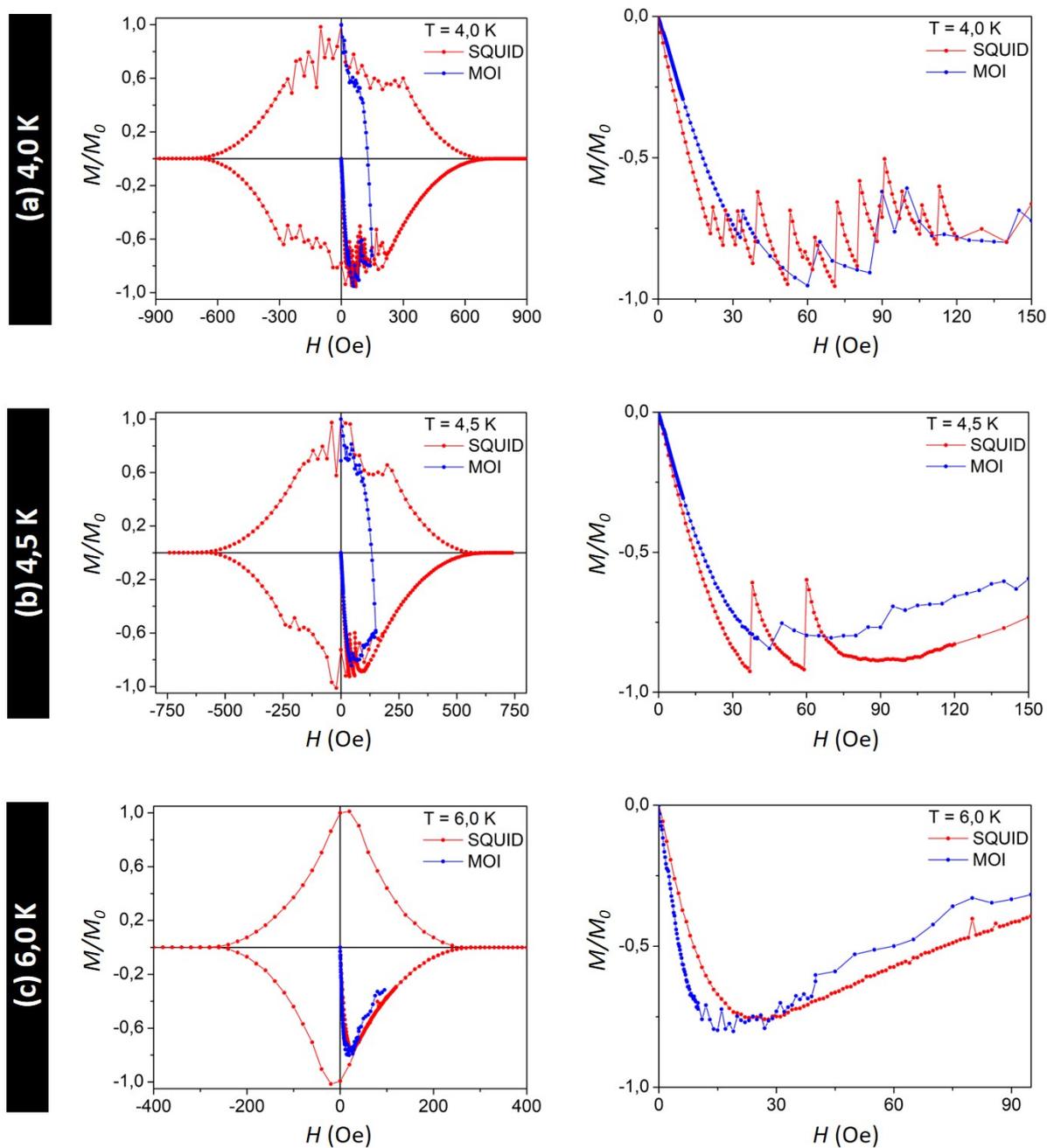


Figura 23: Comparações entre as curvas $M \times H$ obtidas via MOI (azul) e SQUID (vermelha) em temperaturas de (a) 4,0 K, (b) 4,5 K e (c) 6,0 K. Os painéis à direita mostram ampliações do quarto quadrante de cada curva, correspondentes ao início do ciclo de aplicação de campo.

apresentadas em vermelho. Na coluna à direita, são destacadas as regiões das curvas correspondente ao quarto quadrante, com o campo partindo de zero. Embora a amostra tenha sido submetida a ciclos distintos de campo aplicado, os comportamentos das curvas obtidas através das duas técnicas distintas apresentam elevado grau de semelhança. A diferença no campo aplicado se deve ao fato de que na técnica MOI o campo máximo atingido pelas bobinas utilizadas é inferior ao campo máximo disponível na medida SQUID, limitação imposta pela fonte de corrente usada e, em última instância, pela saturação magnética da MOL que ocorre em campos aplicados de aproximadamente 1000 Oe [44]. As ampliações na coluna da direita possibilitam, mais uma vez, a visualização das assinaturas das avalanches de fluxo que se apresentam como picos nas curvas de magnetização. No entanto, algumas oscilações nas curvas obtidas via MOI correspondem à movimentação dos domínios magnéticos da MOL.

Por fim, a inversão direta da lei de Biot-Savart possibilitou a reconstrução da distribuição de \mathbf{J} a partir da distribuição de B_z . Na Figura 24 são apresentados mapas vetoriais, nos quais a circulação de corrente é indicada pelas setas vermelhas normalizadas. Na coluna à direita são apresentados os perfis das componentes J_x e J_y ao longo da amostra nas direções y e x , respectivamente. No painel (a), verifica-se o padrão de penetração suave de fluxo e a circulação de corrente para $T = 4,5$ K e $H = 45$ Oe. Os perfis da densidade de corrente nessas condições são semelhantes ao previsto por modelos de estado crítico para essa geometria. Já no painel (b), tem-se a penetração de fluxo no regime de avalanches para $T = 4,0$ K e $H = 34$ Oe. Nessas condições, é possível verificar através do mapa vetorial que as correntes de blindagem contornam os dendritos da avalanche de fluxo. No perfil de J_y isso se torna evidente, visto que a faixa sobre a qual o perfil foi tomado atravessa um dendrito da avalanche e no perfil verifica-se um máximo e um mínimo correspondentes à circulação de corrente ao redor desse dendrito. Vale ressaltar que nos mapas vetoriais as setas foram posicionadas apenas nas regiões de campo penetrado como artifício para não poluir as imagens. Na realidade, como previsto pelos modelos de estado crítico aplicados a filmes finos e como pode ser constatado através dos perfis apresentados, há corrente circulando em toda a extensão da amostra.

Os resultados apresentados, além de corroborarem com os modelos de estado crítico estabelecidos, destacam a aplicabilidade da técnica de MOI nas análises qualitativas e quantitativas do comportamento magnético de filmes finos supercondutores. Com o tratamento dado às imagens magneto-ópticas, conseguimos mostrar curvas de histerese similares às obtidas via magnetometria convencional e também verificar a circulação das correntes de blindagem no supercondutor nos regimes de penetração de fluxo suave e de avalanches.

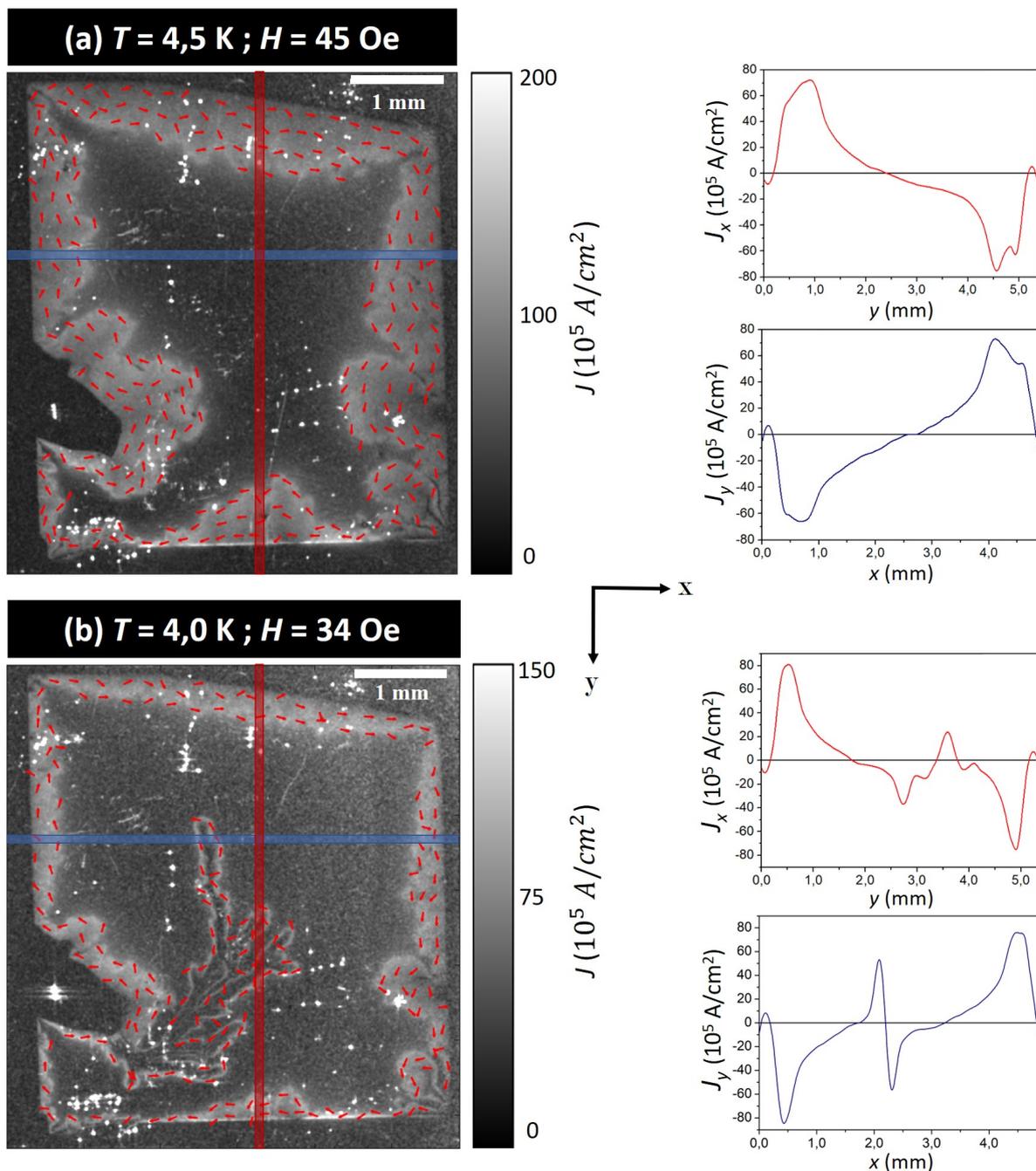


Figura 24: Circulação de \mathbf{J} indicada por setas vermelhas normalizadas, com módulo dado pelo nível de cinza, e perfis de J_x e J_y tomados sobre as faixas vermelhas e azuis, respectivamente, para (a) $T = 4,5 \text{ K}$ e $H = 45 \text{ Oe}$, e (b) $T = 4,0 \text{ K}$ e $H = 34 \text{ Oe}$.

6 Conclusão

Com o novo porta-substratos projetado pelo grupo de pesquisas foi possível o crescimento de filmes finos de chumbo em baixas temperaturas sem a ocorrência de rachaduras. Assim, foram crescidos filmes a 77 K e 300 K por evaporação térmica convencional e realizadas caracterizações microestruturais e magnéticas. A análise microestrutural rea-

lizada via MEV indicou que o filme crescido a 77 K é mais homogêneo e apresenta menor tamanho de grão. Por outro lado, a análise preliminar das propriedades supercondutoras, realizada a partir das imagens de MO, revelou, *a priori*, que o filme depositado a 300 K apresenta maior densidade de corrente crítica, ou seja, possui maior capacidade de blindagem magnética.

Além disso, o dispositivo desenvolvido para o controle de temperatura apresentou o comportamento previsto pelas simulações numéricas. Assim, mediante a adaptações da montagem modificando o contato térmico do dispositivo com o dedo-frio, foi possível alcançar temperaturas entre 77 K e 300 K, possibilitando futuros estudos sistemáticos sobre a influência da temperatura do substrato nas propriedades supercondutoras de filmes de chumbo.

Por fim, os estudos realizados sobre a amostra de chumbo anteriormente depositada pelo grupo de pesquisas possibilitaram a verificação do comportamento previsto pelos modelos de estado crítico, bem como a constatação dos regimes suave e de avalanches para a penetração de fluxo magnético. Adicionalmente, através desses estudos, foi verificado o comportamento das correntes de blindagem que circulam as avalanches de fluxo e a possibilidade de se utilizar a técnica de MOI para a análise qualitativa da magnetização de filmes supercondutores, visto que o comportamento das curvas de magnetização se assemelha ao que foi obtido via magnetometria convencional.

A Implementação de dispositivo para controle de temperatura

Para possibilitar a deposição de filmes com o substrato mantido em temperaturas entre 77 K e 300 K, foi necessária a implementação de um elemento resistivo na região do porta-substratos. No entanto, dado que o novo dedo-frio possui uma massa elevada e é preenchido com nitrogênio líquido, o aquecimento dele como um todo a temperaturas acima de 77 K se mostrou inviável. Nos primeiros testes de resfriamento e aquecimento do dedo-frio, utilizou-se um fio de manganina como elemento resistivo enrolado ao redor do reservatório frio, como mostrado na Figura 25(a), e não foi observado aumento significativo de temperatura. Esses testes foram realizados em condições ambientes (fora da câmara de vácuo), resultando na formação de gelo observada na Figura 25(b), e com 63 W de potência sendo dissipados pelo elemento resistivo. Nos painéis (c) e (d) da Figura 25, são apresentadas as curvas de temperatura em função do tempo para o resfriamento e para a tentativa de aquecimento, respectivamente. Como fonte de tensão utilizou-se um controlador de temperatura Oxford ITC503, que fornece até 80 W com carga de no mínimo 20 Ω . Assim, ao ativar o aquecimento do controlador (*heater*), ele aplica até 40 V no elemento resistivo. Por outro lado, o dedo-frio apresentou elevado grau de estabilidade quando resfriado, o que é importante para as deposições a 77 K. Em ambos os casos, a temperatura foi aferida por um termopar do tipo K conectado ao controlador.

Assim, utilizando o método dos elementos finitos, foram feitas simulações para projetar um novo suporte para substratos a ser acoplado ao dedo-frio já existente. Projetamos um suporte de cobre na forma de um carretel, no qual seria possível enrolar o elemento resistivo, com um comprimento grande para maior homogeneidade térmica na face de montagem dos substratos e um furo central ao longo do seu comprimento para redução da massa. Nos painéis (a) e (b) da Figura 26, são apresentados o desenho do dispositivo projetado e uma fotografia dele com o elemento de aquecimento já posicionado.

Para um primeiro teste de aquecimento, cujos resultados de simulação e experimentais são mostrados na Figura 27(a)-(b), foi utilizado um fio de manganina AWG 36 enrolado ao redor do dispositivo. A resistência medida nesse enrolamento foi de 42 Ω , resultando numa potência dissipada de 38 W com 40 V de tensão aplicados. Nesse teste, a temperatura em que o sistema se estabilizou foi de 134 K, apresentando elevada concordância com a temperatura prevista pela simulação (\sim 140 K). No entanto, notamos que com esses parâmetros o aquecimento não era reproduzível pois o esmalte do fio utilizado não suportava a temperatura local. Após algumas montagens infrutíferas, substituímos o fio AWG 36 por um fio AWG 30 do mesmo material, com o dobro do diâmetro. Nesse novo teste, a resistência medida foi de 35 Ω , com potência dissipada de 26 W quando aplicada uma tensão de 30 V. A fim de se obter temperaturas mais elevadas, reduzimos o contato térmico inserindo uma tela de aço inoxidável entre o dedo-frio e o dispositivo. O resul-

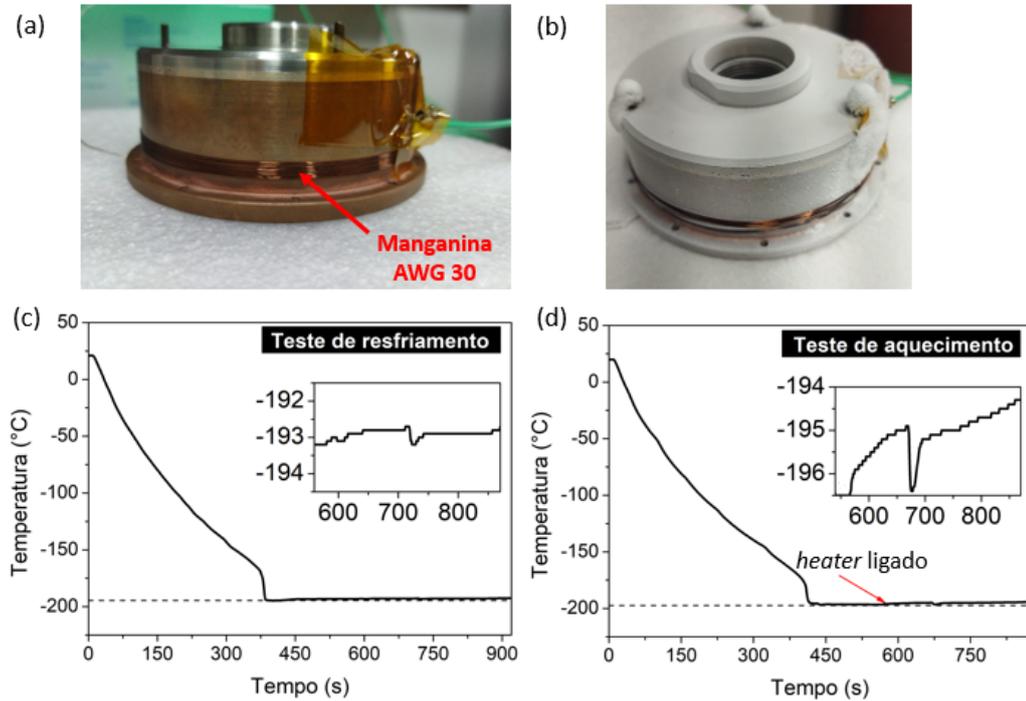


Figura 25: Testes do dedo-frio. Em (a) é possível verificar o fio de manganina como elemento de aquecimento e em (b) a formação de camada de gelo após o resfriamento em condições ambientes. Em (c) e (d) são apresentados os gráficos obtidos nos testes de resfriamento e aquecimento, respectivamente.

tado da simulação com esses novos parâmetros, mas sem considerar a redução do contato térmico, e o resultado do experimento são mostrados nos painéis (c) e (d) da Figura 27. Na nova montagem, atingimos 275 K na região de montagem dos substratos, temperatura muito maior do que a prevista pela simulação (~ 115 K).

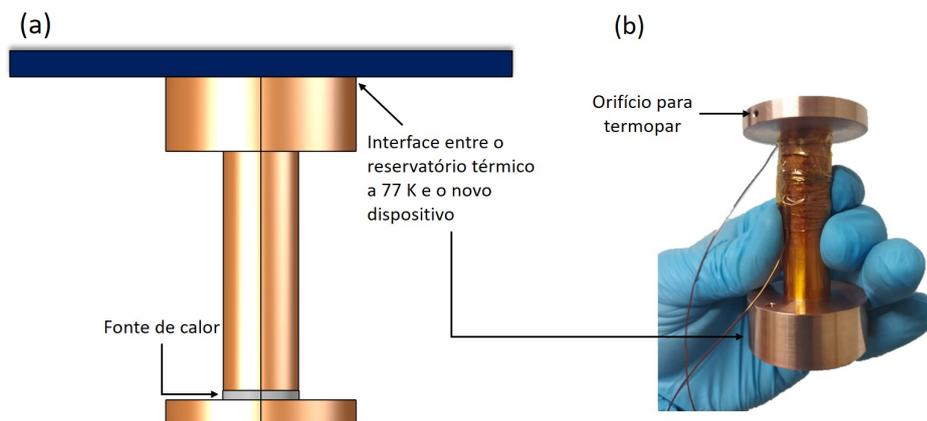


Figura 26: (a) Desenho do dispositivo porta-substratos projetado e (b) fotografia do mesmo após adição do elemento resistivo.

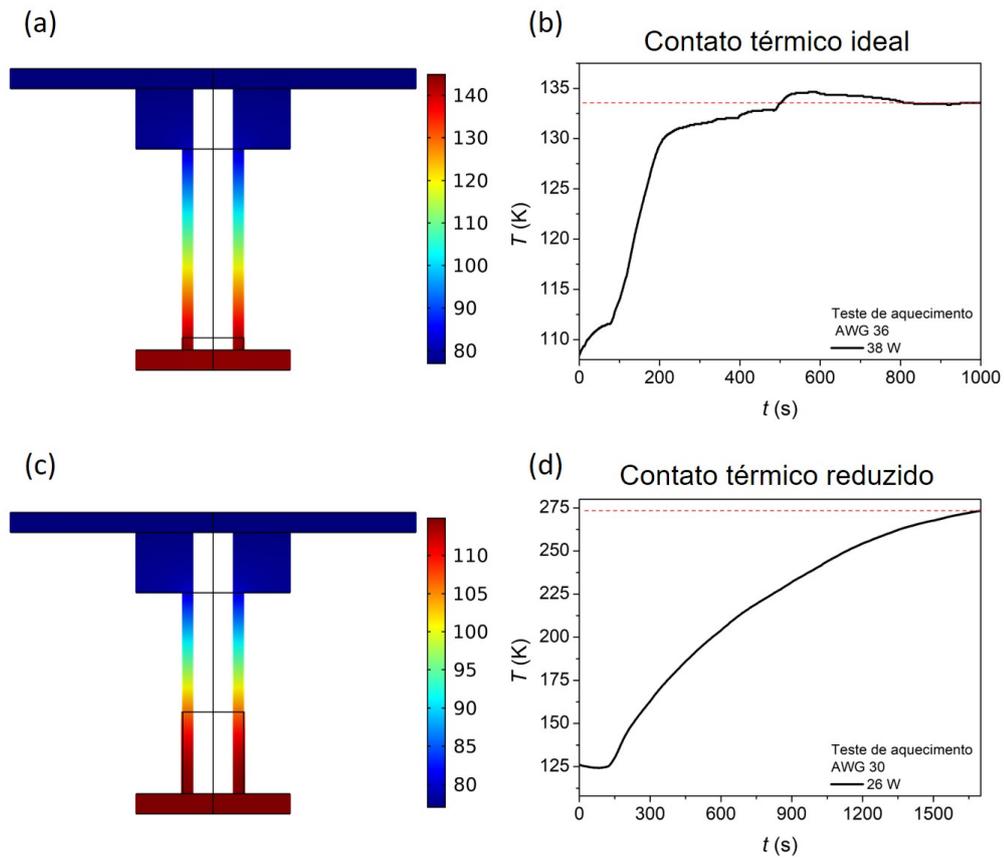


Figura 27: Simulações e testes de aquecimento, respectivamente, do dispositivo com (a)-(b) fio AWG 36 dissipando 38 W e (c)-(d) fio AWG 30 dissipando 26 W.

Assim, o novo dispositivo se mostrou efetivo para o aquecimento entre 77 K e, possivelmente, 300 K, possibilitando futuros estudos com variação sistemática da temperatura dos substratos no crescimento de filmes.

Referências

- [1] H. A. Boorse et al. “Superconductivity of Lead”. Em: *Phys. Rev.* 78 (1950), p. 635. URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRev.78.635>.
- [2] A. Shalnikov. “Superconducting Thin Films”. Em: *Nature* 142 (1938), p. 74. URL: <https://doi.org/10.1038/142074a0>.
- [3] G. J. Dolan e J. Silcox. “Critical Thicknesses in Superconducting Thin Films”. Em: *Phys. Rev. Lett.* 30 (1973), pp. 603–606. URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.30.603>.
- [4] R. Kleiner et al. “Superconducting quantum interference devices: State of the art and applications”. Em: *Proceedings of the IEEE* 92.10 (2004), pp. 1534–1548. URL: <https://doi.org/10.1109/JPROC.2004.833655>.
- [5] Sagar Paul et al. “Micron size superconducting quantum interference devices of lead (Pb)”. Em: *Superconductor Science and Technology* 30 (2017). URL: <https://doi.org/10.1088/1361-6668/aa51e3>.
- [6] Otávio Abreu Pedroso. “Implantação de um sistema de controle de temperatura de substrato e otimização dos parâmetros de deposição de filmes finos supercondutores de chumbo em uma evaporadora térmica convencional”. Relatório de Pesquisa de Iniciação Científica - Universidade Federal de São Carlos, 2019.
- [7] H. Kamerlingh Onnes. “Communications from the Physical Laboratory of the University of Leiden Suppl. 29”. Em: *University of Leiden* (1911).
- [8] Fernanda Ostermann e Paulo Pureur. “*Supercondutividade*”. São Paulo: Livraria da Física, 2005. ISBN: 85-88325-34-9.
- [9] R. A. Serway, C. J. Moses e C. A. Moyer. “*Modern Physics*”. 1st ed. Philadelphia: Saunders College Publishing, 1989. ISBN: 978-0030048449.
- [10] Allister M. Forrest. “Meissner and Ochsenfeld revisited”. Em: *Eur. J. Phys.* 4 (1983), pp. 117–118. URL: <https://doi.org/10.1088/0143-0807/4/2/011>.
- [11] V. V. Schmidt. “*The Physics of Superconductors*”. Berlim: Springer, 1997. ISBN: 3-540-61243-2.
- [12] James F. Annett. “*Superconductivity, Superfluids and Condensates*”. Oxford: Oxford University Press, 2003.
- [13] Marconi B. S. Costa e Antonio C. Pavão. “Supercondutividade: um século de desafios e superação”. Em: *Revista Brasileira de Ensino de Física* 34 (2012).
- [14] V. L. Ginzburg e L. D. Landau. “*On the Theory of Superconductivity*”. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, v. 20, p. 1064, 1950. English version: L. D. Landau, *Collected papers*. Oxford: Pergamon Press, 1965.

- [15] Michael Tinkham. “*Introduction to Superconductivity*”. New York: McGraw-Hill, 1996. ISBN: 0-07-064878-6.
- [16] Charles P. Poole Jr. et al. “*Superconductivity*”. 2nd ed. Elsevier: Amsterdam, 2007. ISBN: 978-0-12-088761-3.
- [17] J. Brisbois et al. “Determination of the magnetic penetration depth in a superconducting Pb film”. Em: *Journal of Applied Physics* 115.103906 (2014). URL: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4868298>.
- [18] A. A. Abrikosov. “On the magnetic properties of superconductors of the second group”. Em: *Sov. Phys. JETP* 5 (1957).
- [19] M. Motta. “*Flux avalanches in patterned superconducting thin films: ac susceptibility, morphology and related studies*”. Tese de Doutorado - Universidade Federal de São Carlos, 2013.
- [20] C. P. Bean. “Magnetization of Hard Superconductors”. Em: *Phys. Rev. Lett.* 8 (1962). URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.8.250>.
- [21] E. Zeldov et al. “Magnetization and transport currents in thin superconducting films”. Em: *Phys. Rev. B* 49 (1994). URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.49.9802>.
- [22] M. Motta et al. “*Magnetic flux avalanches in superconducting films with mesoscopic artificial patterns*” in *The Oxford Handbook of Small Superconductors*. (A. V. Narlikar, ed.) Oxford: University Press, 2017. ISBN: 978-0-19-873816-9.
- [23] F. Colauto et al. “Controlling magnetic flux penetration in low- T_C superconducting films and hybrids”. Em: *Supercond. Sci. Technol.* 34.013002 (2021), p. 29. URL: <https://doi.org/10.1088/1361-6668/abac1e>.
- [24] K. S. Sree Harsha. “*Principles of Vapor Deposition of Thin Films*”. Amsterdam: Elsevier, 2006. ISBN: 978-0-08-044699-8.
- [25] Krishna Seshan. “*Handbook of Thin-Film Deposition Processes and Techniques*”. New York: Noyes Publications, 2002. ISBN: 0-8155-1442-5.
- [26] M. Faraday. “Experimental Relations of Gold (and Other Metals) to light”. Em: *Phil. Trans. Roy. Soc.* 147 (1857). URL: <https://doi.org/10.1098/rstl.1857.0011>.
- [27] Stefan Cannon Lofgran. “*Thin Film Deposition and Vacuum Technology*”. Senior Thesis - Brigham Young University, 2013.
- [28] Ho Soonmin. “Thermal Evaporation of Thin Films: Review”. Em: *Middle-East Journal of Scientific Research* 23 (2015), pp. 2695–2699. URL: <https://doi.org/10.5829/idosi.mejsr.2015.23.11.22638>.

- [29] Mandakini N. Chaudhari et al. “Thin film Deposition Methods: A Critical Review”. Em: *International Journal for Research in Applied Science and Engineering Technology* 9 (2021), pp. 521–523. URL: <https://doi.org/10.22214/ijraset.2021.36154>.
- [30] Donald M. Mattox. “*Handbook of physical vapor deposition (PVD) processing*”. New Jersey: Noyes Publications, 1998. ISBN: 0-8155-1422-0.
- [31] N. Kaiser. “Review of the fundamentals of thin-film growth”. Em: *Applied Optics* 41 (2002), pp. 3053–3060. URL: <https://doi.org/10.1364/AO.41.003053>.
- [32] Milton Ohring. “*The Materials Science of Thin Films*”. San Diego: Academic Press, 1992. ISBN: 0-12-524990-X.
- [33] P. B. Barna e M. Adamik. “Fundamental structure forming phenomena of polycrystalline films and the structure zone models”. Em: *Thin Solid Films* 317 (1998), pp. 27–33. URL: [https://doi.org/10.1016/S0040-6090\(97\)00503-8](https://doi.org/10.1016/S0040-6090(97)00503-8).
- [34] E. Broitman et al. “Microstructural, nanomechanical, and microtribological properties of Pb thin films prepared by pulsed laser deposition and thermal evaporation techniques”. Em: *Journal of Vacuum Science & Technology A* 34.021505 (2015). URL: <https://doi.org/10.1116/1.4936080>.
- [35] A. Lorusso et al. “Characterisation of Pb thin films prepared by the nanosecond pulsed laser deposition technique for photocathode application”. Em: *Thin Solid Films* 579 (2015), 50–56. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2015.02.033>.
- [36] A. Dasgupta et al. “Flux pinning by grain boundaries in niobium bicrystals”. Em: *Philosophical Magazine Part B* 38.4 (1978), pp. 367–380. URL: <http://dx.doi.org/10.1080/13642817808245338>.
- [37] D. Dew-Hughes. “Flux pinning mechanisms in type II superconductors”. Em: *Philosophical Magazine* 30.2 (1974), pp. 293–305. URL: <http://dx.doi.org/10.1080/14786439808206556>.
- [38] C.S. Pande e R.A. Masumura. “Grain boundary and grain size effects in high and low transition temperature superconductors”. Em: *Materials Science and Engineering B* 32 (1995), pp. 247–253. URL: [https://doi.org/10.1016/0921-5107\(95\)03015-8](https://doi.org/10.1016/0921-5107(95)03015-8).
- [39] G. Le Lay et al. “Angle-resolved photoemission of the initial stages of interface formation between Pb and Si (111) 7x7”. Em: *Studies in Surface Science and Catalysis* 40 (1988), pp. 210–212. URL: [https://doi.org/10.1016/S0167-2991\(08\)65044-2](https://doi.org/10.1016/S0167-2991(08)65044-2).
- [40] Lincoln B. L. G. Pinheiro. “*Quantitative magneto-optical imaging in bi-layered and in nanoscaled wedge-shaped superconducting thin films*”. Tese de Doutorado - Universidade Federal de São Carlos, 2019.

- [41] Lincoln B. L. G. Pinheiro et al. “Magnetic flux penetration in nanoscale wedge-shaped superconducting thin films”. Em: *Physical Review B* 106.224520 (2022). URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.106.224520>.
- [42] C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. 8th ed. New Jersey: John Wiley & Sons, Inc, 2005.
- [43] Joseph I. Goldstein et al. “*Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis*”. 4th ed. New York: Springer, 2018.
- [44] Ch. Joss et al. “Magneto-optical studies of current distributions in high- T_c superconductors”. Em: *Rep. Prog. Phys.* 65 (2002).
- [45] Alexander Y. Meltzer et al. “Direct Reconstruction of Two-Dimensional Currents in Thin Films from Magnetic-Field Measurements”. Em: *Physical Review Applied* 8 (2017).
- [46] J. Pearl. “Current distribution in superconducting films carrying quantized fluxoids”. Em: *Applied Physics Letters* 5 (1964), pp. 65–66.