12/10/83
[REDACTED] *pu*

"ATENUAÇÃO DE ONDAS ACÚSTICAS
SUPERFICIAIS EM FILMES FINOS
GRANULARES SUPERCONDUTORES DE
Pb"

Hiroshi Tejima

Tese apresentada ao Instituto de Física
e Química de São Carlos, para a obten
ção do título de DOUTOR EM CIÊNCIAS
(Física Básica)

Orientador: Prof.Dr. Milton Ferreira
de Souza

Departamento de Física e Ciência dos Materiais

São Carlos - 1983

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE _____

Hiroshi Tejima

APRESENTADA AO INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS, DA
UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, EM 17 DE agosto DE 1983.

COMISSÃO JULGADORA:

Milton Ferreira de Souza

Dr. Milton Ferreira de Souza - Orientador

Luiz Nunes de Oliveira

Dr. Luiz Nunes de Oliveira

Frank P. Missel

Dr. Frank Patrick Missel

Moises Levy

Dr. Moises Levy

Wilson Aires Ortiz

Dr. Wilson Aires Ortiz

Aos meus pais

À minha esposa

Izabel

Às minhas filhas

Erika e Denise

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Milton Ferreira de Souza pela orientação, atenção, amizade e esforço imprescindível para a realização deste trabalho.

Ao Prof. Moises Levy, do Departamento de Física, University of Wisconsin-Milwaukee (UWM), USA, pela sugestão do trabalho, discussões, ensinamentos e facilidades no uso de recursos do Laboratório de Física de Estado Sólido Experimental da UWM-Milwaukee (USA).

Ao Prof. Frank Missel, do Instituto de Física da Universidade de São Paulo, pelos conselhos, colaboração e amizade.

Aos Professores Dale Snider, Luc Leplae e Richard Sorbello, da UWM-Milwaukee (USA) pelas proveitosas discussões e sugestões.

Ao Prof. José Alberto R. Jordão, do Departamento de Física da Universidade Federal de São Carlos, pela colaboração, discussões e amizade.

Aos colegas da UWM-Milwaukee, USA; especialmente a Jeffrey Schmidt pelo preparo das facilidades do uso de laboratório de baixas temperaturas, programação (de interfaces) do computador e amizade. A Chris Figura, pela preparação de transdutores interdigitais e amizade. A Sun Keun Jenn, no auxílio à execução de experiências e amizade. A Hans P. Fredricksen pela introdução ao sistema de OAS, baixas temperaturas e amizade. A Susan Schneider e A. Schenstron pela colaboração e amizade.

Aos funcionários do Departamento de Física da UWM-Milwaukee, USA; especialmente Michael Mitchel, por sua eficiente colaboração na fabricação de dispositivos para o sistema de "sputtering" a R.F.

A Don Dovalla e Tom Taubel pelos serviços de manutenção em eletrônica.

A todo pessoal técnico e professores do DFCM e DF-UFSCar, que contribuíram de alguma forma para a realização deste trabalho.

A Antonio de P. Blanco pelo trabalho de datilografia.

Ao CNPq pelo apoio financeiro.

A todos que de alguma forma contribuíram para a realização deste trabalho.

A Cláudio de Oliveira Filho pelos desenhos das figuras.

ÍNDICE

Lista de figuras	i
Resumo e abstract	iv
Capítulo I - INTRODUÇÃO	1
Capítulo II - ARRANJO EXPERIMENTAL E PROCEDIMENTO ...	7
2.1 - Preparação de substrato e transdutor de onda acústica superficial	7
2.2 - Medidas de perda de inserção em transdu tores interdigitais de OAS	12
2.3 - Preparação da amostra	14
2.3.1 - Máscara para deposição do filme	14
2.3.2 - Equipamento para "sputtering" a rádio- frequência e procedimento	16
2.4 - Preparação do sistema de vácuo	17
2.5. - Especificações do alvo metálico utiliza do e procedimento para sua montagem ...	19
2.6 - Bombardeio iônico	19
2.7 - Admissão de gás reativo (O ₂) e cronome- tragem	21
2.8 - Seleção de parâmetros utilizados para efetuar "sputtering" reativo	25
2.9 - Caracterização da microestrutura	27
2.10 - Determinação de espessuras de filmes ..	27
2.11 - Equipamento eletrônico para geração, de teção e medidas de OAS	29
2.12 - Termômetro utilizado	31
2.13 - Sistema de resfriamento a He ⁴	32
2.14 - Controle de temperatura	34

Capítulo III	- TEORIA	36
3.1	- Atenuação de onda acústica superficial em filmes finos metálicos depositados em substrato piezoelétrico	36
3.2	- Modelo de Adler	37
3.3	- Análise de Vórtice-Antivórtice	49
3.3.1	- Distância quadrática média de separação de vórtice isolado	59
3.3.2	- Densidade de vórtices	61
3.3.3	- Densidade de dipolos	62
Capítulo IV		
4.1	- Dados experimentais e análise	64
4.2	- Dados de PbO-1	70
4.2.1	- PbO-1 depositado sobre LiNbO_3 - yz	70
4.2.2	- Atenuação de OAS para $T < T_c$	75
4.2.3	- Atenuação de OAS normalizada para dife- rentes frequências	79
4.3	- Dados de Pb-5	83
4.3.1	- Pb depositado em substrato de quartzo - corte ST	83
4.3.2	- Atenuação de OAS no filme Pb-5	86
Capítulo V	- CONCLUSÃO	91
5.1	- Medidas de OAS	91
5.2	- Comentário e Sugestões	92
Referências Bibliográficas		94

LISTA DE FIGURAS

CAPÍTULO II

Figura 1	- Processo microlitofotográfico para produzir transdutores interdigitais.....	9
Figura 2	- Diagrama esquemático de padrão típico de eletrodo interdigital	10
Figura 3	- Diagrama de blocos do arranjo experimental utilizado para medidas de perdas por inserção em um transdutor interdigital	13
Figura 4	- Configuração de filme depositado em substrato piezoelétrico (LiNbO_3) dotado de TIDs ..	15
Figura 5	- Diagrama de blocos do sistema de "sputtering reativo"	18
Figura 6	- Variação da resistência em função do tempo de filme granular de Pb (amostra PbO-1) ...	23
Figura 7	- Variação de resistência em função do tempo de filme granular de Pb (amostra PbO-30) ..	24
Figura 8	- Micrografia (SEM) de filme granular de Pb típico com aumento x 10.000	28
Figura 9	- Diagrama de blocos do sistema eletrônico utilizado para produzir, detetar e medir atenuação de ondas acústicas superficiais	30
Figura 10	- Sistema de resfriamento a He^4	33
Figura 11	- Diagrama de blocos do controlador de temperatura	35

CAPÍTULO III

Figura 12 - Circuito análogo para o modelo de Adler para a atenuação de OAS	39
Figura 13 - Diagrama de fasores correspondente	39
Figura 14 - Diagrama de fasores com a componente de V_c (imaginária): V_1	41
Figura 15 - Incremento no vetor de onda $\vec{k}$ devido à perda resistiva	43
Figura 16 - Densidade de corrente no filme	46
Figura 17 - Cargas induzidas pelo substrato piezoelétrico em a) filme resistivo e b) condutor perfeito	47

CAPÍTULO IV

Figura 18 - Atenuação de onda acústica superficial (PbO 1) $f=550$ MHz	65
Figura 19 - Atenuação de onda acústica superficial (PbO 1) $f=600$ MHz	66
Figura 20 - Atenuação de onda acústica superficial (PbO 1) $f=675$ MHz	67
Figura 21 - a) Resistência de filme PbO-1	68
b) Atenuação de OAS relativa	68
Figura 22 - Atenuação normalizada de OAS ($f=700$ MHz) e resistência normalizada (PbO-1)	69
Figura 23 - Atenuação normalizada, $f=550$ MHz (pontilhado) Atenuação normalizada, $f=700$ MHz (contínuo) ..	80
Figura 24 - Atenuação normalizada, $f=600$ MHz (pontilhado) Atenuação normalizada, $f=700$ MHz (contínuo) ..	81

Figura 25	- Atenuação normalizada, $f=675$ MHz (pontilhado)	
	Atenuação normalizada, $f=700$ MHz (contínuo) ..	82
Figura 26	- Resistência do filme Pb-5	84
Figura 27	- Atenuação relativa - $f=580$ MHz	85

RESUMO

Este trabalho tem por objetivo a investigação de atenuação de ondas acústicas superficiais (OAS) em filmes finos granulares supercondutores de PbO e Pb depositados por "sputtering" reativo em substratos piezoelétricos de LiNbO_3 e quartzo (ST). As medidas de atenuação de OAS em função da temperatura foram efetuadas para diferentes potências de rádio-frequência, e em frequência variando de 550 MHz a ~ 700 MHz.

A atenuação de OAS medida em filme granular de chumbo ($550 \text{ \AA}$), dotada de alta resistividade de filme (de $1000 \Omega/\square$) se manifesta piezoeletricamente induzida e proporcional à resistividade do filme. No estado supercondutor esta medida de atenuação excede esta simples relação. Esta atenuação excedente é atribuída à resistência local produzida pela presença de dipolos de vórtice-antivórtice.

ABSTRACT

The subject of this work is the investigation of surface acoustic waves (SAW) on superconducting Pb and PbO granular thin films deposited by "sputtering" on piezoelectric substrate (LiNbO_3 and quartz ST).

The SAW attenuation was measured as a function of the temperature (1,3K to 20K) for different r.f. power, in frequencies from 550 MHz to 700 MHz.

The SAW attenuation, measured on granular lead film ($550 \text{ \AA}$) with high sheet resistivity ($1000 \Omega/\square$) appears to be piezoelectrically induced and should be proportional to the sheet resistivity. In the superconducting state the measured.

attenuation exceeds this simple relation. This excess attenuation is ascribed to the local resistance produced by the presence of vortex-antivortex dipoles.

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO

A pesquisa discutida nesta dissertação teve como objetivo o estudo da atenuação de ondas acústicas superficiais (OAS) em filmes finos granulares de chumbo.

A investigação de propriedades supercondutoras em sistemas a duas dimensões (2D) é recente e de considerável interesse. Beasley *et al*¹ foram os primeiros a mostrar a possibilidade da existência de transição topológica do tipo Kosterlitz-Thouless² em filmes finos supercondutores. Hebard *et al*³ investigaram a relação entre a resistividade de filme fino no estado normal e o fenômeno de localização em filmes finos granulares de chumbo.

A escolha da utilização do método de onda acústica superficial é um recurso ideal para a investigação dos sistemas a duas dimensões (2D) como por exemplo em filmes supercondutores, uma vez o fluxo de potência da referida onda é limitado a uma profundidade de alguns poucos comprimentos de onda da superfície. Com o objetivo de tornar viável a experiência de atenuação acústica superficial, um filme fino granular de chumbo foi depositado sobre uma superfície de um substrato piezoelétrico (LiNbO_3), no qual um par de eletrodos metálicos (transdutores) interdigitais foi depositado previamente. O referido filme granular de chumbo foi depositado utilizando-se o método de extração de partículas através do bombardeio de íons de gás inerte (Ar^+) em presença de gás reativo (O_2) sobre um eletrodo (alvo) catodo de chumbo de alta pureza. Em terminologia inglesa, mais conhecido como "sputtering" reativo. Um dos transdutores inter-

digitais foi utilizado para gerar a onda acústica superficial e o outro utilizado como receptor. A técnica microlitofotográfica usada para a fabricação dos transdutores interdigitais, bem como o método de "sputtering" reativo utilizado, serão discutidos no capítulo II.

Teorias sobre interação entre ondas acústicas superficiais em substrato piezoelétrico cobertos com filme fino semicondutor foram sugeridas por Campbell⁴, Ingebritsen⁵, Tseng⁶ e Adler⁷. Para efeitos de análise de dados experimentais utilizamos o modelo de Adler para a atenuação de OAS em filmes no estado normal que será discutido no capítulo III. Os cálculos de Adler para a atenuação de OAS mostram que a atenuação é proporcional à resistividade do filme, o que está de acordo com os resultados experimentais de atenuação para o filme no estado normal. Porém se a resistividade do filme mostra diminuir gradualmente até se anular no estado supercondutor, a atenuação de OAS apresenta um valor que excede esta relação simples, isto é, a curva de atenuação em função da temperatura próximo e abaixo da temperatura de transição supercondutora, T_c , apresenta valor residual (excesso). Este excesso é atribuído à existência de resistência local devido à presença de dipolos vórtice-antivórtice do tipo Kosterlitz-Thouless¹³. A análise de vórtice-antivórtice é efetuada seguindo os cálculos de Turkevich¹⁵ no capítulo IV.

Rayleigh⁸ foi o primeiro a estudar as ondas superficiais que são perturbações elásticas que se propagam nos limites de um sólido e decaem exponencialmente com a profundidade, resolvendo o caso de contorno plano entre um semi espaço elástico isotrópico e o vácuo. Segundo Victorov⁹, na onda acústica superficial, a partícula do meio descreve uma trajetória elíptica cujo eixo maior é normal à superfície e o eixo menor é paralelo à direção de propagação da onda. A excentrici-

dade da elipse depende da distância à superfície e da relação de Poisson do meio. Para o maior deslocamento da partícula da superfície do sólido o sentido de movimento da partícula é oposto ao vetor de onda $\vec{k}$.

A análise da onda acústica superficial em substrato piezoelétrico coberto de filme fino metálico é muito complexa sob o ponto de vista teórico. Campbell e Jones⁴ obtiveram soluções para o caso de substrato piezoelétrico cobertos de filmes finos semicondutores. Hemphill¹¹ mediu a atenuação de OAS em substratos piezoelétricos dotados de valores elevados de fator de acoplamento eletromecânico (LiNbO_3) durante a deposição de filmes finos de ouro e alumínio, por evaporação a vácuo e encontrou bom acordo com a teoria proposta por Adler. Maiores detalhes de dados em propagação de ondas acústicas superficiais para diferentes orientações em substratos piezoelétricos e não piezoelétrico são dados na referência¹⁰.

Em geral a onda acústica superficial é gerada e detectada em superfície de material piezoelétrico utilizando-se transdutores interdigitais (TID), que são constituídos de eletrodos metálicos microscópicos de forma geométrica semelhante a um pente depositados sobre um substrato piezoelétrico, utilizando-se técnica microlitofotográfica. Quando um sinal de rádio-frequência (UHF) é aplicado a um destes TIDs, uma onda acústica superficial de mesma frequência é gerada em ambos os sentidos, em direção perpendicular ao do arranjo dos transdutores interdigitais. O comprimento de onda acústica superficial, correspondendo à frequência fundamental, é de duas vezes a distância existente entre dois eletrodos adjacentes.

Akao¹², 1969, foi o primeiro a obter a atenuação de onda acústica superficial em filmes finos de chumbo e índio obtidos por evaporação a vácuo, em substratos de cristais de

quartzo de corte ST, e encontrou bom acordo da atenuação de OAS determinada pela teoria de Bardeen, Cooper e Schrieffer (BCS) para supercondutores.

Fredricksen et al¹³ investigaram a atenuação de OAS em filmes finos supercondutores de Nb₃Sn e NbN, de alta resistividade depositados em substratos de LiNbO₃. Para o filme de Nb₃Sn obtiveram resultado experimental da atenuação em bom acordo com a teoria prevista por BCS. Todavia para o filme supercondutores de NbN obtiveram atenuação de comportamento muito interessante e intrigante com resultado bem distinto ao previsto via BCS para um supercondutor simples.

Recentemente, tentamos medidas de atenuação de ondas acústicas superficiais em filmes finos de chumbo de alta pureza, de baixa resistividade, e observamos variação de atenuação de aproximadamente 0,2 dB/cm, cuja observação, próxima à temperatura crítica de transição é limitada pela estabilidade do gerador de UHF, utilizado para excitar o transdutor interdigital.

Em geral, a transição do tipo Kosterlitz-Thouless tem sido observada em filmes supercondutores dotados de alta resistividade no estado normal (1 kΩ/□) que em geral são de natureza granular. Maekawa¹⁴ observou que se fosse necessária a produção de filme homogêneo de alta resistividade feito de metal puro, o mesmo teria uma espessura menor que o espaçamento interatômico, o que é de realização inviável experimentalmente. Os filmes supercondutores de chumbo de alta resistividade (obtidos por "sputtering") por serem de natureza granular, apresentam vantagem adicional de possibilitar através de oxidação controlada, obtermos resistividade de filme fino a um valor conveniente para investigação, seguindo o procedimento descrito por Hebard et al³.

A investigação experimental descrita nesta dissertação, mostra que a medida de atenuação de OAS em filmes finos supercondutores granulares de alta resistividade ($R > 1 \text{ k}\Omega/\square$), depositados em substratos piezoelétricos de fator de acoplamento eletromecânico elevado (LiNbO_3 de corte y.z) constitui um bom método para a investigação da existência de dipolos de vórtice-antivórtice prevista por Beasley et al¹ que estenderam a teoria proposta por Kosterlitz e Thouless², cujos cálculos foram efetuados por Turkevich¹⁵.

Beasley et al¹, obtiveram uma relação simples entre a temperatura crítica de Kosterlitz-Thouless e a resistividade de filme fino no estado normal, embora Kosterlitz ou Thouless mencionassem que a interação logarítmica de alcance finito em filmes finos supercondutores destruisse a analogia precisa aos filmes finos de hélio. Beasley et al¹ mostraram que sistemas supercondutores (bidimensionais), em que se o parâmetro $\lambda_1 = \frac{\lambda^2}{d}$ (onde λ e d são respectivamente a profundidade de London efetivo e d a espessura do filme) é suficientemente grande (da ordem de alguns milímetros), praticamente não apresentaram diferenças em relação a filmes de hélio. O parâmetro λ_1 efetua o papel de profundidade de penetração magnética para campos perpendiculares ao filme. Esta dissertação é efetuada na sequência seguinte:

- No capítulo II, uma descrição de preparação de amostra, do método experimental e do equipamento utilizado para a geração de ondas acústicas superficiais, bem como a medida de atenuação da referida onda e o sistema de resfriamento e controle de baixas temperaturas utilizado na experiência.

- No capítulo III são descritos: o modelo para explicar a atenuação de OAS em substrato piezoelétrico em presença de

filme metálico em sua superfície e a análise de vórtice-antivórtice proposta por Kosterlitz e Thouless baseada sobretudo em resultados dos cálculos obtidos por Turkevich¹⁵. O capítulo IV é dedicado aos dados experimentais e análise e finalmente no capítulo V, as conclusões.

CAPÍTULO II

ARRANJO EXPERIMENTAL E PROCEDIMENTO

2.1 - Preparação de substrato e transdutor de onda acústica superficial

Precedendo a operação de deposição de filme fino supercondutor granular de chumbo sobre o substrato de niobato de lítio, efetuamos a fabricação de transdutores interdigitais utilizando processo microlitofotográfico que é descrito a seguir. Um substrato piezoelétrico retangular de dimensões 25,4mm de comprimento por 12,7mm de largura, dotado de superfície opticamente polida (de niobato de lítio (LiNbO_3), corte y.z) e fervido durante cinco minutos e em seguida submetido por mais cinco minutos em limpeza ultrassônica em três solventes orgânicos diferentes. Primeiro, em tricloroetileno, segundo em acetona pura e terceiro em metanol e finalmente em água deionizada. Para cada solvente os procedimentos de aquecimento de solvente e limpeza ultrassônica foram repetidos para descontaminar a superfície de resíduos graxos o melhor possível. Após efetuado cada processo de limpeza de substrato, o mesmo era submetido a uma corrente de gás nitrogênio, a fim de se obter uma superfície seca. Uma vez limpo o substrato, o mesmo foi submetido à secagem durante dez horas, à temperatura de 250°C em forno a vácuo, afim de evaporar todo resíduo de água contido em seu interior. Após efetuada a secagem, uma gota de solução de "photo resist" positivo (Azo plate AZ 1350 H, filtrado através de filtro de microporos de $1\mu\text{m}$ e $0,25\mu\text{m}$) foi depositada sobre a superfície do substrato. Em seguida, o substrato foi submetido a movimento de alta rotação

em um dispositivo denominado "spinner" a 7.000 r.p.m. durante 0,25 segundos e em operação contínua a 3.000 r.p.m. durante 30 segundos. Com o procedimento de girar o substrato conforme descrito acima, a solução de fotoresistência é distribuída em forma de camada fina e homogênea. Após esta operação, o substrato dotado de camada de fotoresistência foi submetido a aquecimento à temperatura de 80°C por 10 minutos, com o objetivo de evaporar o solvente da camada de filme fotoresistente. O procedimento da deposição da referida camada é efetuada sob luz amarela.

O substrato coberto de camada de fotoresistência, neste estágio estava preparado para ser submetido ao processo microlitofotográfico.

O processo microlitofotográfico segue o esquema mostrado na figura 1 é descrito a seguir.

Uma vez preparado o substrato, uma máscara laminar de vidro, dotada de padrão de geometria ilustrada na figura 2, é justaposta sobre o substrato em contato com a sua superfície, mantido através da utilização de quatro presilhas magnéticas para fixação. Para que a superfície da máscara se mantivesse paralela à superfície do substrato, as referidas presilhas foram ajustadas de forma que as franjas de interferência de luz obtidas se mantivessem em paralelo, o que constitui, em geral, um bom critério para obter uniformidade para a justaposição uniforme da máscara.

Uma vez justaposta a máscara sobre o substrato, figura 1.3, o conjunto é exposto à luz ultravioleta (lâmpada de hidrogênio) durante cerca de 15 a 20 segundos. As regiões transparentes da máscara, correspondentes aos eletrodos interdigitais, de configuração ilustrada na figura 2, permitiram que a luz penetrasse através das mesmas atingindo a camada de película de fotoresistência ocorrendo desta forma reação fotoquímica.

Figura 1 - Processo microlitofotográfico para produzir TID

Figura 2 - Padrão típico de eletrodos interdigitais

A revelação das partes expostas à luz, foi efetuada aspergindo-se 30cm^3 de solução de 10% de ácido acético, operação em que foram retiradas as porções da fotoresistência correspondentes à configuração dos eletrodos interdigitais, figura 1.4. Em seguida, a superfície do substrato foi enxaguada em água deionizada e submetida a uma secagem preliminar rápida sob um jato de gás nitrogênio (N_2). O padrão revelado obtido sobre o substrato foi cuidadosamente observado utilizando-se um microscópio para verificar as definições dos contornos da configuração resultante, bem como o aparecimento eventual de falhas, fatores estes que determinam o sucesso na obtenção dos eletrodos interdigitais.

Em sequência, foi efetuada a deposição metálica à vácuo sobre o substrato impresso com padrão de TID, sob pressão inicial de cerca de 5×10^{-7} Torr. A deposição à vácuo de prata foi efetuada numa razão de $150 \text{ \AA}/\text{minuto}$, até que se obtivesse uma espessura de $1500 \text{ \AA}$, monitorada por um medidor digital de espessura. Um filme de cromo, de $50 \text{ \AA}$, foi depositado previamente sobre a superfície do substrato, para assegurar melhor aderência do filme de prata sobre o mesmo substrato. A fim de completar o processo de revelação por "lift-off", o substrato metalizado foi mergulhado em acetona pura, o que provocou a dissolução da camada de fotoresistência restante, deixando somente o padrão metalizado de transdutor interdigital sobre o substrato.

Para viabilizar o emprego prático de TIDs, quatro fios terminais de ouro foram conectados por termocompressão (Unitek) aos terminais dos eletrodos para a posterior aplicação de sinais de rádio-frequência. Uma vez efetuadas as operações acima descritas, os transdutores interdigitais de OAS, estavam preparados para que fossem efetuadas as deposições de amostras de

filmes finos por "sputtering", o que será discutido na seção de "preparação de amostras". Porém, antes de ser efetuada a deposição da amostra, o desempenho dos transdutores interdigitais foi testado através de medidas de perdas de inserção que são descritas a seguir.

2.2 - Medidas de perdas de inserção em transdutores interdigitais de OAS

A fim de testar a eficiência dos TIDs, utilizamos um arranjo experimental, cujo diagrama esquemático é mostrado na figura 3, para medirmos perdas por inserção.

O método basicamente, consiste em aplicar um trem periódico de ondas de rádio-frequência (~ 700 MHz), próximas à fundamental. O referido trem de ondas é obtido utilizando-se um gerador de ultra alta frequência (UAF), cujo sinal é modulado por um gerador de pulsos. A modulação é obtida utilizando-se uma unidade misturadora à diodo.

O trem de onda de r.f. é aplicado a um dos transdutores interdigitais que por sua vez produz uma onda acústica superficial que se propaga em direção perpendicular à direção em que estão dispostos os eletrodos interdigitais. O segundo transdutor interdigital é utilizado como receptor de onda acústica superficial, reconverte a mesma em pulso elétrico que é monitorado por um osciloscópio, após ser amplificado. A amplitude do pulso referente à OAS é comparada a do pulso obtido à saída de um atenuador de décadas. Esta comparação é efetuada comutando-se alternadamente o pulso correspondente a OAS e o pulso proveniente da saída do atenuador de décadas ligado à saída do gerador.

Figura 3 - Diagrama de blocos do sistema utilizado para a medida de perda de inserção de transdutores interdigitais de OAS

Ambos os pulsos são monitorados através de um osciloscópio, ajustando-se a atenuação de décadas até equiparar as amplitudes do pulso correspondente a OAS e o que provém do atenuador. A condição de melhor transmissão de potência aos transdutores é obtida utilizando linhas triplas de ajuste de impedância, sendo que uma foi conectada aos terminais de entrada e outra aos terminais de saída dos transdutores de OAS.

O valor da leitura de atenuação obtido para equiparar ambas as amplitudes de pulsos, é o valor correspondente à perda por inserção do transdutor de OAS em decibéis (dB). Em geral, se a perda por inserção for inferior a 20 dB/cm, o emprego do transdutor é viável para objetivos de nossas experiências em filmes supercondutores.

2.3 - Preparação da amostra

Deposição de filme fino supercondutor granular de chumbo em substrato de LiNbO_3 .

2.3.1 - Máscara para deposição do filme

Com o objetivo de obter um filme de contornos nítidos, depositado sobre o substrato de LiNbO_3 , ao longo da direção de propagação z , o referido substrato foi colocado dentro de uma base metálica (Al) dotada de fenda de forma geométrica semelhante à do substrato parte do conjunto do suporte de máscara, para que fosse mantida em posição fixa. A seguir, uma máscara de lâmina de aço inoxidável foi disposta sobre o suporte da mesma, espaçado de 0,5mm da superfície do substrato. Este es

Figura 4 - Configuração do filme depositado sobre o substrato piezoelétrico de LiNbO_3

paçamento é mantido o mais próximo à superfície do substrato, suficiente para proteger as conexões elétricas (contatos de ouro) dos transdutores interdigitais, bem como evitar descargas de alta tensão sobre os transdutores durante o processo de deposição do filme amostra.

A máscara de aço inoxidável utilizada, dotada de uma fenda de forma retangular cujas dimensões (10mm por 6mm), determinaram aproximadamente as dimensões do filme depositado disposta na configuração ilustrada na figura 4.

2.3.2 - Equipamento para "sputtering" a rádio frequência e procedimento

O sistema de "sputtering" reativo a rádio-frequência, constituído de um gerador de potência de R.F. (R.D. Mathis, modelo SP.310), cuja frequência de operação era de 13,5 MHz, dotada de potência variável e uma unidade de medida de tensão de polarização acoplada ao circuito do catodo através de uma unidade com ajuste de impedância (R.D. Mathis M-1700), como está ilustrado no diagrama de blocos da figura 2.5. O princípio de funcionamento de "sputtering" a rádio-frequência bem como o aspecto genérico são descritos em detalhes nas referências^{30,31,32}.

Para a geração de rádio-frequência, basicamente há uma unidade excitadora que gera um sinal de 13,5 MHz, cuja amplitude pode ser ajustada a um valor conveniente para controlar a potência a ser entregue ao catodo. O sinal de rádio-frequência gerado pelo circuito excitador é processado iterativamente em dois circuitos: um de sintonização e outro de ajuste de impedância a fim de obter melhor transferência de potência. Desta forma, o sinal do excitador é aplicado à entrada do amplificador de potência de rádio-frequência, que por sua vez transfere um sinal de alta potência ao catodo (chumbo) do sistema de "sputtering".

Uma unidade adicional constituída de elementos reativos ajustáveis é utilizada entre a saída do circuito amplificador de rádio-frequência e o catodo do sistema de "sputtering" com o objetivo de obter melhor transferência de potência, minimizando-se a componente refletida do sinal de r.f. por minimização taxa de onda estacionária. O trabalho de "sputtering" é precedido pela preparação do sistema de vácuo e disposição prévia da máscara para o filme a ser depositado, conforme descrito na seção 2.4.

2.4 - Preparação do sistema de vácuo

O sistema de vácuo utilizado para a deposição do filme era do tipo convencional de bomba de difusão a óleo de silicone, dotada de armadilha refrigerada a nitrogênio líquido, sendo a mesma assistida por uma bomba mecânica (Edwards ED-150).

Após o procedimento da preparação do catodo (ativo) de chumbo o que é descrito posteriormente neste capítulo, o suporte de máscara do filme foi colocado sobre a base de anodo aterrado. Um obturador metálico, móvel é disposto entre o plano da máscara do filme e o plano do catodo do metal a ser depositado (chumbo).

O procedimento para a obtenção de vácuo também é convencional, isto é, o sistema é bombeado previamente para se obter pressão de aproximadamente 50 μmHg , em seguida com a atuação de uma bomba de difusão a óleo, foi obtido vácuo necessário no sistema, com pressão residual de 5×10^{-7} Torr, suficiente para evitar contaminação de gases no processo de "sputtering".

Uma vez obtido o vácuo, acima descrito, o sistema estava preparado para iniciar o procedimento de bombardeio iônico (argônio) sobre o alvo metálico, a fim de se efetuar a limpeza de

sua superfície e posteriormente efetuar a admissão de gás reativo (O_2) para a obtenção de filmes finos granulares de PbO ou Pb que será discutido na seção 2.6.

2.5 - Especificações do alvo metálico utilizado e procedimento para sua montagem

O alvo (eletrodo) metálico utilizado era feito de chumbo policristalino de alta pureza (99,999%), de 5cm de diâmetro e 0,64cm de espessura de fabricação CERAC CHEMICAL..O mesmo alvo, foi colocado sobre um suporte circular de alumínio, utilizando um adesivo Epoxi Armstrong. O referido suporte de alumínio era dotado de rosca para permitir sua instalação em seu suporte dotado de sistema de refrigeração a água para evitar superaquecimento do alvo durante o processo de bombardeio iônico.

2.6 - Bombardeio iônico

O procedimento de bombardeio de íons de argônio sobre o alvo metálico (catodo) foi utilizado para a limpeza de sua superfície. Em geral, a superfície do alvo metálico adquire contaminação, devido à oxidação e substância do sistema de vácuo. Para o alvo de chumbo, a duração do processo de bombardeio iônico foi de uma hora, sob pressão de 5 a 6 μHg com a aplicação de tensão de r.f. de aproximadamente 2 kV.

A fim de iniciar o processo de ionização foi utilizado o procedimento descrito a seguir: O sistema de vácuo foi utilizado a fim de se obter uma pressão residual de cerca de 10^{-6} Torr. Uma vez alcançado este valor de pressão, a válvula de vácuo

principal foi completamente fechada e em seguida, o gás argônio admitido para dentro da câmara de vácuo, até que a pressão de 25 μ Hg fosse obtida. Esta pressão foi controlada pela exaustão do gás argônio através da ação da bomba difusora, ajustando-se a abertura da válvula principal de vácuo ao mínimo suficiente para permitir a manutenção da pressão de Ar constante dentro da campânula. Este procedimento foi utilizado para evitar a ascensão de corrente de óleo da bomba de difusão, que geralmente pode ocorrer se aumentarmos o fluxo bombeado de Ar ($p > 50 \mu$ Hg). A pressão do manômetro instalado à saída do cilindro que contém argônio foi ajustada para $6,9 \times 10^4$ Pa, enquanto que a válvula tipo agulha de fabricação Nupro, teve o ajuste micrométrico em 19 divisões. Uma vez alcançada a pressão de argônio para 25 μ Hg, uma tensão de rádio-frequência gradualmente aumentada foi aplicada ao catodo (alvo de chumbo), de forma suficiente para obter ionização do gás (argônio). Em operação contínua, a potência de rádio-frequência foi ajustada de forma a se obter o máximo de tensão de polarização do catodo na unidade de acoplamento, ajustando-se iterativamente os controles de saída e carga, enquanto se efetuava a pressão de gás argônio, a um valor mínimo, cerca de 5 μ Hg, suficiente para manutenção de descarga estável.

A tensão de polarização do catodo foi ajustada em cerca de 2 kilovolts. Foi verificado experimentalmente que o controle do valor da tensão de polarização é um parâmetro mais efetivo que o controle de potência de R.F. para obtermos reprodutibilidade.

Uma tensão de polarização de catodo de 2 kV foi mantida durante uma hora ou mais a fim de se obter a limpeza do alvo metálico.

2.7 - Admissão de gás reativo (O_2) e cronometragem

Após efetuada a limpeza do alvo através de bombardeio iônico (Ar^+), com o sistema ainda em ionização, foi admitido gás oxigênio (O_2) para dentro da campanula à vácuo, com o ajuste micrométrico da válvula-agulha correspondente ajustada a 8,9 divisões, o que fez corresponder um aumento de pressão de argônio inicialmente de 5,5 μ Hg para 6,2 μ Hg de pressão total de mistura de gás argônio e oxigênio. Esta operação foi efetuada reduzindo-se a tensão de polarização de catodo para 1,2 kV, reajustando-se o nível de potência de R.F., cinco minutos antes de processarmos a admissão do gás reativo para dentro da campanula.

A admissão de oxigênio foi efetuada, aguardando-se um tempo de três minutos adicionais para obter mistura homogênea de gases. Em seguida, pela abertura do obturador mecânico por 20 (vinte) segundos foi obtida a deposição do filme de espessura situada na faixa de 300 a 400 Å e de resistividade de cerca de 1 $k\Omega/\square$ a 500 $\Omega/\square$, apropriada para as finalidades das nossas experiências.

O critério para cronometrar o processo utilizado após a deposição e os valores de ajustes de pressões são explicados a seguir.

Após o término da deposição que se efetuou após o fechamento do obturador mecânico, o gerador de rádio-frequência foi desligado e a câmara de vácuo (campanula) foi evacuada para eliminar a mistura de gases utilizada. Em seguida, gás argônio puro foi admitido para a mesma câmara até que a pressão equalizasse a pressão externa. Tal procedimento foi empregado para evitar oxidação repentina da amostra.

A resistividade do filme fino granular de chumbo obti

do foi determinada a temperatura ambiente, utilizando-se o método de quatro terminais. A configuração dos referidos terminais, feitos de platina pura, é ilustrada na figura 15. Dois dos terminais (I_+ e I_-) externos, foram utilizados para injetar corrente contínua de intensidade de $10 \mu A$ e dois terminais internos foram utilizados para a medida de diferença de potencial proporcional a resistência no intervalo em que estão em contato.

Ao determinar a resistividade do filme granular de chumbo obtido através do procedimento descrito anteriormente, observamos através das figuras 6 e 7, características típicas interessantes de variação de resistividade em função do tempo de exposição quando as amostras foram submetidas a oxigenação através de exposição ao ar. Observa-se nas curvas características, que inicialmente a resistência diminui de valor rapidamente atingindo um valor mínimo, e após longa exposição a mesma grandeza aumenta monotonicamente devido ao processo de oxigenação.

O mecanismo deste comportamento de diminuição inicial de valor da resistividade ainda não foi precisamente determinado. Uma possibilidade é que o filme finos tenham absorvido oxigênio no processo de deposição e que este seja lentamente liberado de sua estrutura. Uma análise utilizando-se raio-X, possivelmente seria necessária, para determinarmos este comportamento.

Para a finalidade de nossa investigação, uma vez que o valor da resistividade do filme atingiu seu valor mínimo, a referida amostra foi montada sob vácuo e refrigerada a temperatura de nitrogênio líquido; procedimento que mantém estável o filme, com resistividade inicial de aproximadamente $1 k\Omega/\square$. As amostras obtidas por "sputtering" apresentaram estabilidade excepcional para a finalidade de nossas experiências. Hebard et al mencionaram as vantagens das amostras obtidas por técnica de "sputtering" a feixe de íons sobre as obtidas por evaporação, o qual pode ser comprovado.

Figura 6 - Variação de resistência com o tempo de oxidação

Figura 7 - Variação de resistência com o tempo de oxidação

2.8 - Seleção de parâmetros utilizados para efetuar "sputtering" reativo

Devido à natureza complicada do processo de "sputtering" reativo para a deposição de filme granular de chumbo em sistemas de "sputtering" a diodo, uma vez que o alvo metálico, o gás reativo e o substrato estão imersos no plasma, a determinação das condições para a obtenção de filmes granulares de alta resistividade e determinadas espessuras, necessárias para o presente trabalho, foram obtidas através de tentativas (75), utilizando-se observações empíricas e intuitivas, cujo conjunto de parâmetros escolhidos foi descrito em seções anteriores deste capítulo. A seguir, descrevemos o resultado de observações que nos conduziram à escolha dos parâmetros de "sputtering" anteriormente descritos.

Inicialmente, observamos experimentalmente, durante o processo de deposição do filme, a existência de uma mínima tensão de polarização para sustentar o sistema ionizado a pressões em torno de 5 μ Hg. No sistema de "sputtering" utilizado, a mínima tensão de polarização necessária para manter estável o plasma, era de 900 V, a pressão de argônio mantida em 5 μ Hg. A distância entre o plano do alvo metálico e o substrato em que o filme foi depositado era de 2,5 cm. A melhor condição para o "sputtering" recomendada pelo fabricante do equipamento, era de efetuar a deposição do filme à menor pressão do gás argônio, suficiente para sustentar o plasma estável. No sistema utilizado, esta pressão foi mantida em 5,5 μ Hg. Também observou-se que a pressões inferiores, ao admitirmos gás oxigênio para efetuar o "sputtering" reativo, era muito difícil obter estabilidade para manutenção da ionização. Um procedimento importante utilizado para obter reprodutibilidade de características de filmes no

sistema de "sputtering" reativo a R.F., foi cronometrar a operação de admissão do gás O_2 (oxigênio), uma vez que neste sistema era inevitável a oxidação parcial da superfície do alvo metálico. Um procedimento não menos importante é a escolha da tensão de polarização do catodo, pois observamos que se a mesma fosse superior a 1,5 kV, mesmo utilizando concentrações de gás oxigênio superiores a 15% em ambiente de Ar^+ , obtivemos filmes de baixa resistividade, variando de 2 a 8 ohms/ $\square$. Utilizando-se tensão de polarização de 2,5 kV mesmo a pressão parcial de O_2 superior a 15%, obtivemos filmes de baixa resistividade. Posteriormente, tentamos a deposição, utilizando a mesma pressão parcial de O_2 , à uma tensão de polarização de 1,2 kV e obtivemos filmes isolantes de PbO .

Para uma tensão de polarização mantida em 1,2 kV, com uma concentração de O_2 de cerca de 9%, observamos que o intervalo de tempo utilizado para a admissão de O_2 para obter a mistura de gases, antes de se efetuar a deposição, tem consequência importante para se obter reprodutibilidade de características. Enquanto que, efetuando-se a deposição sob concentração de 12% a oxidação das partículas constituintes ocorria rapidamente, durante a admissão da mesma na camada de vácuo. Observou-se com o procedimento acima descrito que para obter reprodutibilidade de filmes granulares de chumbo basicamente controlamos a contaminação (oxidação parcial) da superfície do alvo, cronometrando-se o tempo de admissão do O_2 , antes de se efetuar a deposição. Enquanto que com a redução da tensão de polarização do catodo, obtinhamos maior tempo de voo das partículas ejetadas do alvo, e mesmo a baixas concentrações de O_2 (4%), aumentava-se a chance de se obter maior oxidação de partículas de chumbo. Utilizando-se o procedimento acima descrito, foi possível obter filmes cujas resistividades eram de aproximadamente 1 k Ω / $\square$ e de espes-

suras de 300 Å a 500 Å apropriadas para o propósito de nossas investigações. A análise do processo de "sputtering" reativo, ainda, constitui um problema complicado, cujo mecanismo não é completamente conhecido para explicar a estequiometria. Acreditamos que para fins práticos, cada sistema deve ser tratado especificamente em se tratando de "sputtering" reativo, com auxílio de diagnóstico de análise de plasma.

2.9 - Caracterização da microestrutura

A caracterização da microestrutura dos filmes granulares obtidos foi testado utilizando-se microscópio de varredura de elétrons, com aumento máximo de 30.000 (trinta mil) vezes. Porém, devido a limitação de resolução (~ 1000 Å), as dimensões de grãos constituintes não puderam ser determinadas. Hebard et al³, utilizaram microscópio eletrônico de transmissão (TEM) com relativo sucesso. A possibilidade de utilizar esta técnica está limitada pela natureza diferente dos substratos utilizados, piezoelétricos e não piezoelétricos.

2.10 - Determinação de espessuras de filmes

Devido à baixa dureza da superfície do filme granular de chumbo, não foi possível utilizar uma determinação direta do monitor de perfil (espessura) de fabricação da Dektak. A fim de contornar o problema, depositamos uma camada de tungstênio sobre o filme de chumbo utilizando também a técnica de "sputtering". A referida camada, de aproximadamente 3000 Å de espessura

Figura 8 - Micrografia (SEM) de filme granular de Pb com aumento x 10.000

apresenta superfície de dureza, insensível aos efeitos de ponta de prova do monitor de espessura. Medindo-se a altura do perfil de filmes, depositadas sob mesmas condições, pudemos determinar a taxa de deposição (espessura em função do tempo de deposição do filme). O monitor de perfil de filmes utilizado, de fabricação Dektak (Sloan) foi previamente calibrado, utilizando-se um padrão de $7700 \text{ \AA}$ de espessura, depositado em substrato de quartzo.

2.11 - Equipamento eletrônico para geração, detecção e medidas de OAS

O arranjo experimental de equipamento eletrônico utilizado para gerar, detetar e medir ondas acústicas superficiais é apresentado em forma de diagrama de blocos na figura 9.

Um gerador de UHF (HP 612) modulado por um gerador de pulsos, fornece pulsos de rádio-frequência que são convertidos em ondas acústicas superficiais através de transdutores interdigitais (TID). As ondas acústicas superficiais, após se propagarem através da amostra (filme e superfície do substrato) são reconvertidas piezoeletricamente em sinal elétrico através de um segundo transdutor interdigital (receptor). O sinal detetado é processado através de uma unidade amplificador-misturador com o auxílio de um oscilador local e heterodinizado a uma frequência intermediária (FI) de 30 MHz. O sinal de FI é processado através de um amplificador logarítmico e detetado através de um integrador síncrono ("box-car"). O referido integrador analisa o sinal detetado fornecendo uma tensão de C.C., em sua saída, proporcional à amplitude do pulso de R.F., obtido no TID (receptor), que por sua vez é enviada a um registrador tipo X-Y e

Figura 9 - Diagrama de blocos do sistema eletrônico utilizado para produzir, detetar e medir atenuação de ondas acústicas superficiais

também a um computador (Tektronix 4503) através de um conversor analógico digital, para posterior armazenamento em fita magnética.

Um gerador de ultra-alta frequência de fabricação Hewlett-Packard, modelo 612 A, foi utilizado para excitar um dos transdutores interdigitais para gerar OAS. A potência máxima de rádio-frequência fornecida era de aproximadamente 10 miliwatts, com estabilidade de $\pm 0,1$ dB. A unidade misturadora (de fabricação LEL Varian Assoc., modelo UFK-2-30-12-50) utilizada é dotada para operar na faixa de frequência de 200 a 1000 MHz.

2.12 - Termômetro utilizado

Um termômetro de germânio de fabricação Cryocal Inc. foi utilizado para medir temperaturas de 1,5 K a 20 K. O mesmo dispositivo era alimentado por um gerador de corrente contínua de 10 μ A de intensidade, através de dois terminais. O valor da resistência foi determinado medindo-se a diferença de potencial existentes entre outros dois terminais intermediários. O suporte da amostra e o resistor de aquecimento foram montados sobre uma ponta de prova feita de cobre, que durante as experiências funciona imerso em He⁴ líquido. Um invólucro de latão encerrando o suporte da amostra em vácuo dotado de selagem feita de fio de índio foi submetido ao teste de vazamento antes de introduzirmos hélio líquido dentro do "Dewar" duplo do sistema de refrigeração.

2.13 - Sistema de resfriamento a He^4

O sistema de resfriamento a He^4 cujo diagrama é ilustrado na figura (10), é constituído de dois "dewars", dispostos coaxialmente. O externo foi utilizado para pré-resfriar o sistema à temperatura de nitrogênio líquido, enquanto que o segundo "dewar" (interno) era utilizado para conter He^4 líquido. Após o "dewar" externo ser preenchido de nitrogênio líquido, uma pequena quantidade de gás nitrogênio (N_2) foi introduzida para dentro da parede a pressão de ($\sim 300 \mu\text{Hg}$) de isolamento ("jacket") do "dewar" interno, para ocorrer o pré-resfriamento do "dewar" interno, através de transferência de calor. Observando-se que o "dewar" interno era previamente evacuado e a seguir preenchido com gás de He^4 , até atingir pressão de cerca de 38 cmHg. Em seguida o pólo contendo a amostra foi preenchido com gás He^4 a uma pressão de 1000 μHg desta forma a amostra era termicamente acoplada ao banho de nitrogênio líquido. Posteriormente, quando a temperatura da amostra atingisse 77 K, o hélio líquido era transferido para o "dewar" interno após a parede isolante ("jacket") ser evacuada, para ser isolada termicamente do "dewar" externo, contendo nitrogênio. Uma vez efetuada a transferência do hélio líquido, após alguns segundos ocorrendo equilíbrio térmico da amostra com o banho de hélio, reduzia-se a pressão do pólo de resfriamento da amostra, através da utilização de bomba mecânica para obtermos temperaturas em torno de 1,3 K. Desta forma, o sistema de resfriamento a He^4 se encontrava preparado para a atuação do controlador de temperatura, cuja descrição é efetuada a seguir.

Figura 10 - Sistema de resfriamento a He⁴

2.14 - Controle de temperatura

O sistema constituído de resistor de aquecimento e termômetro foi montado em contato com o suporte da amostra. O diagrama de blocos do controlador é ilustrado na figura 11.

Basicamente, o controle é efetuado ligando-se o sensor (um resistor de carbono) que constitui um dos braços de uma ponte de resistores. O outro braço da ponte, constituído por um potenciômetro helicoidal ("helipot") acoplado mecanicamente a um motor síncrono, utilizado como varredor de temperatura, é ajustado a uma temperatura de partida (inicial).

O circuito em ponte de resistores, é alimentado por uma fonte de tensão alternada, derivada da rede de alimentação. Se eventualmente fosse estabelecido um desequilíbrio entre o valor da resistência acoplada ao motor e o valor da resistência do termômetro (sensor), uma tensão alternada (sinal erro) proporcional ao desequilíbrio era estabelecida. Esta última é amplificada e aplicada à entrada de um circuito detetor sensível à fase que tem por referência o sinal de frequência da rede de alimentação (60 Hz). O detetor de fase por sua vez fornece em sua saída uma tensão contínua (C.C.) proporcional à amplitude do sinal erro obtido junto ao circuito em ponte. Essa tensão (contínua) é aplicada à entrada de um amplificador de potência, que fornece corrente ao resistor de aquecimento. Um circuito adicional para controlar a constante de tempo é acoplado ao circuito do resistor de aquecimento para afrouxar a resposta de controle, bem como a entrada do circuito amplificador era dotado de controle de ganho para evitar instabilidades.

Figura 11 - Diagrama de blocos do controlador de temperatura.

CAPÍTULO III

TEORIA

3.1 - Atenuação de onda acústica superficial em filmes finos metálicos depositados em substrato piezoelétrico

A onda acústica superficial se propagando em cristais piezoelétricos é afetada pelas propriedades eletromagnéticas do meio adjacente. Segundo Campbell e Jones⁴, um meio sem perdas (não dissipativo) influencia a velocidade de fase e um meio dissipativo causa atenuação. Devido ao interesse em guias de ondas e amplificação, uma considerável atenção foi dedicada ao estudo de propagação de ondas superficiais em filmes finos^{16,17}. Ao relatar medidas de variações relativas de velocidades de ondas acústicas superficiais causadas por um filme fino condutor depositado sobre um substrato piezoelétrico, Schulz e Matsinger¹⁸, observaram a condição temporária em que ocorria alta atenuação simultaneamente com uma rápida variação de fase devido à variação em velocidade do som com o substrato sem deposição de filme e em curto circuito. Foi observado que o efeito era maior para materiais dotados de constante de acoplamento eletromecânico elevados como o LiNbO_3 .

A atenuação de ondas acústicas superficiais em materiais recobertos de filme semicondutor foi investigada por Ingebritsen⁵. Adler⁷, utilizando um método elementar, baseado em intuição física obteve resultado semelhante, com tratamento menos rigoroso que o utilizado por Ingebritsen. Para a interpretação de nossos resultados de medidas de atenuação, a expressão obtida por Adler é mais conveniente. Portanto o modelo utilizado por Adler é descrito a seguir.

3.2 - Modelo de Adler

Segundo descrição proposta por Adler, quando uma onda acústica se propaga em um material piezoelétrico, somente parte de sua energia potencial é utilizada para produzir deformação elástica, o restante produz campo elétrico que acompanha a onda. A fração de energia potencial total em forma elétrica é K^2 , onde K é denominado fator de acoplamento eletromecânico. Na superfície livre estes campos elétricos se estendem no espaço acima do meio piezoelétrico. Se a referida superfície livre se torna um bom condutor (por exemplo, depositando-se um filme metálico), os campos elétricos que se estendem vão se anular, pois as cargas induzidas no condutor irão se mover livremente no mesmo, cancelando os campos. A presença do filme tem efeito sobre um dado alongamento elástico ξ e a energia potencial da onda é reduzida por uma fração K^2 .

Portanto, da definição de K^2 , temos

$$\frac{\frac{1}{2} \mu_0 \xi^2 - \frac{1}{2} \mu \xi^2}{\frac{1}{2} \mu_0 \xi^2} = K^2 \quad (3.1)$$

onde μ e μ_0 são as constantes de rigidez para os casos "em curto circuito" e em aberto, respectivamente.

A mesma relação (3.1), pode ser simplesmente reescrita:

$$\frac{\mu - \mu_0}{\mu_0} = - K^2 \quad (3.2)$$

em que a variação relativa da constante de rigidez dá uma medida de K^2 .

Da relação:

$$\frac{\lambda}{v} = \frac{\mu}{\rho} \quad (3.3)$$

onde v é a velocidade do som e ρ densidade do meio,

se $K^2 \ll 1$, a fração da redução na velocidade é dada por:

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \frac{v - v_0}{v_0} \approx - \frac{K^2}{2} \quad (3.4)$$

O vetor de onda de som k , para uma frequência ω , é

$$K = \frac{\omega}{v} = \frac{\omega}{v_0 (1 - \frac{K^2}{2})} \approx \frac{\omega}{v_0} (1 + \frac{K^2}{2}) \quad (3.5)$$

Portanto, a fração de incremento do vetor de onda pode ser expressa como:

$$\frac{\Delta k}{k_0} = \frac{k - k_0}{k_0} \approx \frac{K^2}{2} \quad (3.6)$$

A superfície condutora faz com que o campo elétrico distribuído se anule devido ao efeito de reposição de cargas livres no condutor. Num condutor não ideal, esta reposição ocorre numa razão finita e caracterizada por uma exponencial se aproximando do equilíbrio com uma constante de tempo τ . Para uma onda se propagando através da superfície do substrato, há uma onda de carga induzida com um atraso (de fase), que depende da condutividade do filme metálico. Uma situação análoga é um simples circuito RC (figura 12). O módulo da diferença de potencial V_C nos terminais do capacitor é dado por:

Figura 12 - Circuito análogo para o modelo de Adler para a atenuação de OAS

$$\tau = RC$$

$$\operatorname{tg} \phi = \omega \tau$$

$$V_C = V_S \cos \phi$$

$$V_1 = V_S \cos \phi \operatorname{sen} \phi$$

$$V_1 = V_S \frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2}$$

Figura 13 - Diagrama de fasores correspondente

$$V_C = z_C |I| = \left(-\frac{i}{\omega C}\right) \frac{V_s}{\left|-\frac{i}{\omega C} + R\right|} \quad (3.7)$$

onde:

$$|I| = \frac{V_s}{z}, \quad z \text{ é a impedância total em série}$$

$$e \quad i = \sqrt{-1}$$

$$z = R + 1/i\omega C$$

Portanto,

$$V_C = z_C |I| = -i \frac{V_s}{(R^2 C^2 \omega^2 + 1)} \quad (3.8)$$

Se $\tau = RC$ é o tempo de relaxação,

$$V_C = -i \frac{V_s}{(\omega^2 \tau^2 + 1)^{1/2}} \quad (3.9)$$

é a tensão nos terminais do capacitor que aparece com atraso de fase igual a:

$$\phi = \arctg \left(-\frac{1}{\omega \tau}\right) \quad (3.10)$$

O sinal negativo na expressão de V_C indica que a tensão no capacitor surge atrasada em relação à tensão de excitação, ou seja:

$$V_C = V_s \cos \phi = V_s \frac{1}{(\omega^2 \tau^2 + 1)^{1/2}} \quad (3.11)$$

A resistência neste modelo representa o filme metálico não perfeitamente condutor, enquanto que o campo elétrico no

Figura 14- Diagrama de fasores com a componente de v_C (imaginária): v_l

capacitor representa o campo elétrico através da interface. A componente da tensão do capacitor (está com fase de 90° em relação à tensão do gerador) é denominada V_1 e representa a componente imaginária de V_C (figura 14).

A mesma tensão pode ser expressa como:

$$\begin{aligned} V_1 &= V_C \sin \phi = V_S \cos \phi \sin \phi \\ &= \left(\frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2} \right) \end{aligned} \quad (3.12)$$

Em termos mecânicos, a onda de cargas induzidas que segue a onda superficial resulta em variação da constante de propagação em número de onda. A analogia nos leva a concluir a componente em quadratura desta variação constitui uma perda (de energia) por radiano para a onda superficial, que é igual a α/k_0 (figura 15).

A perda por radiano é dada por:

$$\frac{\alpha}{k_0} = \frac{\Delta k}{k_0} \sin \phi \cos \phi \quad (3.13)$$

ou, reescrita como:

$$\alpha = \frac{\omega K^2}{2 v_0} \left(\frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) \quad (3.14)$$

que é a expressão para o coeficiente de atenuação para a onda superficial de frequência ω e a velocidade V_0 . Na expressão acima, resta determinar τ , o tempo de relaxação. Assume-se a situação com um substrato de permissividade ϵ , recoberto de filme fino resistivo de condutividade σ , acima do qual está o ar de permissividade ϵ_0 . A uniformidade do campo elétrico acima do subs-

$$\frac{\Delta k_0}{k} \approx \frac{K^2}{2}$$

$$\frac{a}{k} \approx \frac{K^2}{2} \frac{\omega T}{1 + (\omega T)^2}$$

Figura 15- Incremento no vetor de onda $\vec{k}$ devido à perda resistiva

trato, permite a combinação de permissividades, da mesma forma dos capacitores associados em paralelo.

Portanto,

$$\tau = \frac{\epsilon_0 + \epsilon}{\sigma} \quad (3.15)$$

σ está relacionada a R através da seguinte relação:

$$R = \frac{1}{\sigma t} \quad (3.16)$$

onde t é a espessura do filme.

Resolvendo a equação de Laplace:

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} = 0 \quad (3.17)$$

com ϕ independente de y , $\frac{\partial^2 \phi}{\partial y^2} = 0$

Com a condição de contorno, para $z = 0$, $\phi(x, 0) = \phi_0 \sin kx$, e impondo a solução do tipo $\phi(x, z) = \phi_0 \sin kx e^{-kz}$.

Ao substituírmos a mesma na equação de Laplace, acima, temos:

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} = -k^2 \sin kx e^{-kz} \phi_0 \quad (3.18)$$

e

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} = k^2 \sin kx e^{-kz} \phi_0 \quad (3.19)$$

Figura 16 - Densidade de corrente de deslocamento em elemento de filme

A componente normal do deslocamento é

$$D_z = -\epsilon \frac{\partial \phi}{\partial z} = \epsilon k \phi \quad (3.20)$$

Após o gerador ser desligado, a corrente de deslocamento é:

$$\dot{D}_z = \epsilon k \dot{\phi} \quad (3.21)$$

ou sobre a superfície do filme $\dot{D}_z(z=0) = \epsilon k \dot{\phi}(z=0)$

A densidade de corrente no filme é:

$$j = \sigma E_x = \sigma \left(-\frac{\partial \phi}{\partial x} \right) \quad (3.22)$$

A corrente por unidade de largura (y) é dada por:

$$i_1 = \frac{dI}{dy} = j\theta = -\sigma\theta \frac{\partial \phi}{\partial x} \quad (3.23)$$

onde: θ é a espessura do filme

Assumindo que qualquer aumento na intensidade de corrente ao longo de x, deva ser através de uma injeção da corrente de deslocamento,

$$\frac{\partial i_1}{\partial x} = -\dot{D}_z(z=0) \quad (3.24)$$

Substituindo a expressão em termos da equação (3.23) e equação (3.21)

$$-\sigma\theta \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} = -\epsilon k \dot{\phi} \quad (3.25)$$

Figura 17- Cargas induzidas pelo substrato piezoelétrico em
a) filme resistivo
b) condutor perfeito

Lembrando que: $\frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} = -k^2 \phi$

Portanto,

$$\sigma \theta k^2 \phi = - \epsilon k \phi \quad (3.26)$$

ou

$$\epsilon k \phi + \sigma \theta k^2 \phi = 0 \quad (3.27)$$

$$\frac{\epsilon}{\sigma \theta k} \phi + \phi = 0 \quad (3.28)$$

cujas soluções são da forma:

$$\phi = \phi_0 e^{-t/\tau} \quad (3.29)$$

e

$$\begin{aligned} \dot{\phi} &= - \frac{\phi_0}{\tau} e^{-t/\tau} \\ &= - \frac{\phi}{\tau} \end{aligned} \quad (3.30)$$

Substituindo-se (3.29) e (3.30) na equação (3.28), resulta

$$\frac{\epsilon}{\sigma \theta k} \left(- \frac{\phi}{\tau} + \frac{\ddot{\phi}}{\epsilon} \right) = 0 \quad (3.31)$$

De onde, resulta

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\sigma \theta k}{\epsilon} \quad \text{ou} \quad \tau = \frac{\epsilon}{\sigma \theta k} \quad (3.32)$$

Considerando-se dois semi-espacos (adjacentes) análogo à associação de dois capacitores em paralelo, temos:

$$\tau = (\epsilon + \epsilon_0)/k = \frac{(\epsilon + \epsilon_0)}{k} R \quad (3.33)$$

onde, $R_{\square} = \frac{1}{\sigma\theta}$ é a resistividade do filme fino.

τ não possui dependência explícita da espessura do filme mas somente da resistividade do filme, $R_{\square}$.

Para a medida de resistividade de nossa amostra, utilizamos eletrodos de platina dispostos da maneira mostrada na figura (2.4). Se ℓ é a distância entre os eletrodos (intermediários) utilizados para a medida de tensão, W a largura do filme e θ a sua espessura, a resistência do filme é dada pela relação:

$$R = \rho \frac{\ell}{\theta W} \quad (3.34)$$

onde ρ é a resistividade (volumétrica).

Se $R_{\square} = \frac{\rho}{\theta}$ é a resistividade do filme, a mesma pode ser expressa por:

$$R_{\square} = R \frac{W}{\ell} \quad (3.35)$$

que não possui dependência explícita em termos da espessura θ . Porém, somente da relação W/ℓ e do valor da resistência R medida entre os contatos.

3.3 - Análise de Vórtice-Antivórtice

De acordo a teoria proposta por Kosterlitz e Thouless², uma transição em sistema a duas dimensões pode ocorrer, onde a "ordem topológica" é destruída acima da transição devido à dissociação de pares vórtices-antivórtices termicamente excitados.

No modelo de Kosterlitz-Thouless, a energia de excita

ção de um vórtice simples depende logarithmicamente da dimensão da amostra e as referidas excitações ocorrem abaixo da temperatura de transição. A energia de excitação de dipolo vórtice-antivórtice é finita e os dipolos contribuem para a termodinâmica. Para $T > 0$, as flutuações térmicas determinam a separação média de um vórtice de seu respectivo par antivórtice. Nesta temperatura crítica T_{KT} esta separação diverge desta forma liberando vórtices livres, que podem implicar numa transição metal isolante.

Kosterlitz e Thouless argumentaram que para um filme supercondutor não ocorre estritamente a transição de fase. A energia de uma linha de fluxo é finita e as linhas estão sempre presentes por efeito térmico.

Para estabelecer quando a transição de Kosterlitz-Thouless deve ser observável, Beasley¹ et al reconsideraram a relação (análoga) entre T_{KT} e a densidade de superfluido, n_s^{2D} , obtida por Nelson e Kosterlitz¹⁹.

Para o limite:

$$\lim_{T \rightarrow T_{KT}} m^*{}^2 k_B T / \hbar^2 \rho_s(T) = \frac{1}{2} \quad (3.36)$$

quando T se aproxima a T_{KT} pela esquerda a razão $m^*{}^2 k_B T / \hbar^2 \rho_s(T)$, se aproxima de uma constante universal, independente de qualquer efeito externo que possa influenciar $n_s^{2D} \cdot \rho_s(T)$ está relacionada a n_s^{2D} através da relação:

$$\rho_0 = n_s^{2D} \cdot m^* \quad (3.37)$$

onde, m^* é a massa da partícula de superfluido.

A expressão (3.36) foi reescrita por Beasley et al como:

$$k_B T_{KT} = \frac{1}{2} \hbar^2 n_s^{2D} / m^* \quad (3.38)$$

onde, no caso de supercondutor $m^* = 2m$, m é a massa do elétron.

Beasley, expressou a relação (3.36) em forma mais útil, relacionando a densidade superficial n_s^{2D} em termos da densidade (volumétrica) de par de superfluidos n_s do filme, e a densidade volumétrica em termos da profundidade de penetração λ , como:

$$n_s^{2D} = n_s d \quad (3.39)$$

onde, d é a espessura do filme e n_s está relacionada a profundidade de penetração de London:

$$\lambda_L = \frac{m^* c^2}{4 \hbar n_s q^2}^{1/2} \quad (3.40)$$

onde: $q = 2e$ é a carga do superelêtron

$m^* = 2m$ m é a massa do elétron

n_s é a concentração do superelêtron em três dimensões.

Portanto a relação (3.39) n_s^{2D} , pode ser expressa por:

$$n_s^{2D} = n_s d = \frac{1}{2} \frac{m c^2}{4 \hbar e^2} \frac{d}{\lambda^2} \quad (3.41)$$

Substituindo a expressão de n_s^{2D} em (3.38):

$$\begin{aligned} k_B T_{KT} &= \frac{1}{32} \frac{\hbar^2 c^2}{e^2} \frac{d}{\lambda^2} \\ &= \frac{1}{32} \frac{\Phi_0^2}{\hbar^2} \frac{d}{\lambda^2} \end{aligned} \quad (3.42)$$

onde, $\Phi_0 = \frac{hc}{2e}$

$$= \frac{c \hbar}{e} \quad (3.43)$$

é o quantum de fluxo supercondutor.

De (3.42), temos:

$$\lambda^2 = \frac{\Phi_0^2}{32 \eta^2} \frac{d}{k_B T_{KT}} \quad (3.44)$$

e a profundidade de penetração efetiva λ_1 , pode ser escrita como:

$$\lambda_1(T_{KT}) = \frac{\lambda^2}{d} = \frac{\Phi_0^2}{32 \eta^2} \frac{1}{k_B T_{KT}} = \frac{0,98}{T_{KT} (K)} \text{ cm} \quad (3.45)$$

Para estimar λ_1 e T_{KT} em termos de R_n , foi utilizada a expressão de λ_1 , no limite sujo, relacionado ao parâmetro de largura de banda $\Delta(T)$ de BCS, apropriado para filme muito fino:

$$\lambda_1 = \frac{\lambda^2}{d} = \frac{\lambda_L^2(0)}{d} \left(\frac{\xi_0}{\ell} \right) \left\{ \frac{\Delta(T)}{\Delta(0)} \tanh \frac{\beta \Delta(T)}{2} \right\}^{-1} \quad (3.46)$$

Se as expressões seguintes:

$$\lambda_L^2 = \frac{m c^2}{4 \eta n e^2} \quad (3.47)$$

$$\xi_0 = \frac{\hbar v_F}{\eta \Delta(0)} \quad (3.48) \quad \Delta(0) = 1,76 k T_c \quad (3.49)$$

$$\Phi_0 = \frac{2 \eta \hbar c}{2e} = \frac{hc}{e}, \text{ ou } \Phi_0^2 = \left(\frac{hc}{2e} \right)^2 \quad (3.50)$$

forem substituídas na equação (3.46) resulta em:

$$\frac{\lambda^2}{d} = \frac{m c^2}{4 \pi n e^2 d} \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta(0) (v_F \tau)} f^{-1} \quad (3.51)$$

onde f é a expressão entre chaves da equação (3.46).

$$\text{Se } \sigma = \left(\frac{n e^2 \tau}{m} \right) \quad (3.52)$$

A expressão (3.46) pode ser reescrita como:

$$\begin{aligned} \frac{\lambda^2}{d} &= \frac{c^2 \hbar R_{\square} \phi_0^2}{\pi \cdot 4 \pi \cdot 1,76 k T_C} \frac{\phi_0^2}{\frac{h^2 c^2}{4 e^2} 4 \pi^2 \hbar} \\ &= \frac{\phi_0^2 R_{\square} e^2}{\pi (1,76) (4 \pi^4) k T_C \hbar} f^{-1} \\ &= \frac{\phi_0^2 R_{\square} e^2}{(1,76) (4 \pi^5) k T_C \hbar} f^{-1} \\ \lambda_1 &= \frac{1,78 \phi_0^2 R_{\square} e^2}{4 \pi^5 k T_C \hbar} f^{-1} (T/T_C) \end{aligned} \quad (3.53)$$

onde, $\frac{e^2}{\hbar} = \rho_C = 4,12 \text{ k}\Omega/\square$

Substituindo-se (3.53) em (3.45), temos:

$$k_B T_{KT} = \frac{\phi_0^2}{32 \pi^2} \frac{1}{\frac{1,78 \phi_0^2}{4 \pi^5} \frac{e^2}{\hbar} \frac{R_{\square}}{k_B T_C} f^{-1} \left(\frac{T_{KT}}{T_C} \right)} \quad (3.54)$$

$$\begin{aligned} \frac{T_{KT}}{T_C} f^{-1} \left(\frac{T_{KT}}{T_C} \right) &= \frac{4 \pi^5 \hbar}{(32 \pi^2) (1,78) e^2 R_{\square}} \\ &= 2,18 \frac{R_C}{R_{\square}} \end{aligned}$$

Se
$$f = \frac{\Delta(T)}{\Delta(0)} \tanh^{-1} \frac{\Delta(T)}{2kT}$$

Para $T \approx T_C$, com $\Delta(T) \ll 1$

$$f \approx \frac{\Delta(T)}{\Delta(0)} \frac{\Delta(T)}{2kT} \quad (3.55)$$

$$\approx \frac{\Delta^2(T)}{2kT_C \Delta(0)}$$

e, a relação $\frac{\Delta(T)}{\Delta(0)} = 1,74 \left(1 - \frac{T}{T_C}\right)^{1/2}$ (3.56)

para $T \approx T_C$, $\Delta(T) \ll 1$

portanto, substituindo as relações (3.56) em (3.55):

$$f \approx \frac{\Delta(0)}{2kT} (1,74)^2 \left(1 - \frac{T}{T_C}\right)$$

$$f \approx \left(\frac{\Delta(0)}{2kT_C}\right) \left(\frac{T_C}{T}\right) (1,74) \left(1 - \frac{T}{T_C}\right)$$

$$\approx \frac{(1,76) (1,74)^2}{2} \left(\frac{T_C}{T}\right) \left(1 - \frac{T}{T_C}\right)$$

$$\approx \frac{(1,76) (1,74)^2}{2} \left(\frac{T_C}{T} - 1\right) \quad (3.57)$$

para $T = T_{KT}$ e $(T_C - T_{KT} \ll 1)$

$$\frac{\frac{T_{KT}}{T_C}}{(1,76) (1,74)^2 \left(\frac{T_C}{T} - 1\right)} = 2,18 \frac{R_C}{R_0} \quad (3.58)$$

ou

$$\frac{T_C}{T_{KT}}^2 - \frac{T_C}{T_{KT}} - 0,172 \frac{R_D}{R_C} = 0$$

que para $\left| \frac{R_D}{R_C} \right| < 1$, resulta:

$$\frac{T_{KT}}{T_C} = \left(1 + 0,172 \frac{R_D}{R_C} \right)^{-1} \quad (3.59)$$

relação obtida por Beasley et al¹

Turkevich¹⁵ obteve a expressão para a energia de excitação para a dissociação de par de vórtice-antivórtice, distante de r um do outro:

$$\Delta F_{\text{par}} = 2 \pi d \xi^2 \left(\frac{H_C^2}{8 \pi} \right) + \frac{\phi_0}{8 \pi \Lambda} \left[N_0(r/\Lambda) - S_0(r/\Lambda) + S_0(\xi/\Lambda) - N_0(\xi/\Lambda) \right] \quad (3.60)$$

onde N_0 e S_0 são respectivamente as funções de Neuman e Struve de ordem zero, r é a distância entre dois dipolos, $\Lambda = \frac{2\lambda^2}{d}$, onde λ é a profundidade de London efetiva para o limite sujo, d é a espessura do filme, ξ é o comprimento de coerência de Landau-Ginzburg e $\phi = \frac{hc}{2e}$ quantum de fluxo.

No limite assintótico, e para pequenos argumentos a expressão geral para $N_0(z)$, segundo Abramowitz²¹ $r/\Lambda \ll 1$ e $\xi/\Lambda \ll 1$, pode ser escrita como:

$$N_0(z) = \frac{2}{\pi} \ln \left\{ \left(\frac{1}{2} z \right) + \gamma J_0 \right\} (z) - \frac{4}{\pi} \sum_{k=1}^{\infty} (-1)^k \frac{J_{2k}(z)}{k} \quad (3.61)$$

onde, a forma limite para pequenos argumentos da função de Bessel, quando ν é fixo e $z \rightarrow 0$:

$$J_{\nu}(z) \sim \left(\frac{1}{2} z\right)^{\nu} / \Gamma(\nu + 1) \quad (3.62)$$

em particular

$$J_0(z) \sim \left(\frac{1}{2} z\right)^0 / \Gamma(1) = \frac{1}{0!} = 1$$

e o segundo termo da série ($N_0(z)$), tem a forma

$$\begin{aligned} \sum_k \frac{(-1)^k \left(\frac{1}{2} z\right)^{2k} / \Gamma(2k + 1)}{k} &= \\ &= \left| \frac{(-1)^1 \left(\frac{1}{2} z\right)^2}{(1) \Gamma(3)} + \frac{\left(\frac{1}{2} z\right)^4}{(2) \Gamma(5)} + \dots \right| \rightarrow 0 \end{aligned} \quad (3.63)$$

é desprezível quando $z \rightarrow 0$

$$\text{Portanto, } N_0(z) \approx \frac{2}{\pi} \left[\ln \left(\frac{1}{2} z\right) + \gamma \right] \quad (3.64)$$

para pequenos argumentos

$$r/\Lambda \ll 1 \quad \text{e} \quad \xi/\Lambda \ll 1$$

e

$$S_0(z) \approx z + z^2 + \dots$$

Portanto, $S_0(z) \approx 0$, ou explicitamente para o nosso caso

$$S_0(r/\Lambda) \approx 0$$

e

$$S_0(\xi/\Lambda) \approx 0 \quad (3.65)$$

$$e, \quad N_O(r/\Lambda) \approx \frac{2}{\pi} (\ln r/2\Lambda + \gamma)$$

$$N_O(\xi/\Lambda) \approx \frac{2}{\pi} (\ln \xi/2\Lambda + \gamma) \quad (3.66)$$

O primeiro termo de (3.60) ΔF_{par} é dado por:

$$(1^\circ \text{ termo}) = 2 \pi d \xi^2 \frac{H_C^2}{8\pi} = \frac{1}{16\pi^2} \frac{\phi_O^2}{\Lambda} \quad (3.67)$$

$$\text{pois, } H_C = \frac{\phi_O}{2 \sqrt{2} \pi \xi \lambda} \quad e \quad \Lambda = \frac{2\lambda^2}{d}$$

E o segundo termo (escrito em termos de N_O, S_O), resulta

$$(2^\circ \text{ termo}) = \frac{\phi_O^2}{8\pi} \left[\frac{2}{\pi} (\ln r/2\Lambda + \gamma) - \frac{2}{\pi} (\ln \xi/2\Lambda + \gamma) \right]$$

$$= \frac{\phi_O^2}{8\pi\Lambda} \left[\frac{2}{\pi} \ln(r/\xi) \right] \quad (3.68)$$

Portanto, ΔF_{par} pode ser escrito

$$\Delta F_{\text{par}} = \frac{1}{16\pi^2} \frac{\phi_O^2}{\Lambda} + \frac{\phi_O^2}{8\pi\Lambda} \frac{\ln(r/\xi)}{\pi}$$

$$= \left(\frac{\phi_O}{4\pi} \right)^2 (2d/\lambda^2) \ln(r/\xi) + \frac{1}{4} \quad (3.69)$$

Portanto, a expressão de ΔF_{par} para $r/\Lambda \ll 1$ e $\xi/\Lambda \ll 1$ pode ser reescrita como:

$$\Delta F_{\text{par}} = 2 \pi d \xi^2 \left(\frac{H_C^2}{8\pi} \right) + \frac{\phi_O^2}{8\pi\Lambda} \left[\frac{2}{\pi} \left(\ln \frac{r}{2\Lambda} + \gamma \right) - \frac{2}{\pi} \left(\ln \xi/2\Lambda + \gamma \right) \right] \quad (3.70)$$

ou, substituindo-se a expressão de H_c em função de ϕ_0 , ξ e λ (Tinkhan²²), na equação (3.70), temos:

$$\phi_0 = 2 \sqrt{2} \pi \xi \lambda H_c \quad (3.71)$$

o primeiro termo da expressão (3.60) ΔF_{par} pode ser reescrita como:

$$2 \pi d \xi^2 \left(\frac{H_c^2}{8\pi} \right) = \frac{2 \pi d \xi^2 \phi_0^2}{8\pi \cdot 8\pi^2 \xi^2 \lambda^2} = \frac{d}{2\lambda^2} \frac{\phi_0^2}{16\pi^2} = \frac{\phi_0^2}{16\pi^2 \Lambda}$$

com $\Lambda = \frac{2\lambda^2}{d}$

e a forma assintótica de ΔF_{par} é dada por:

$$\Delta F_{\text{par}} = \frac{4\phi_0^2}{(4\pi)^2 \Lambda} \left[\ln r/\xi + \frac{1}{4} \right] \quad (3.72)$$

De forma semelhante, utilizando-se a expressão calculada para a energia de excitação de vórtice simples orientado perpendicularmente ao filme obtido por Pearl²³:

$$F_{\text{vor}} = \pi d \xi^2 \left(H_{cb}/8\pi \right) + (\phi_0^2/16\pi\Lambda) \left[N_0 (R/\Lambda) + \right. \\ \left. - N_0 (\xi/\Lambda) - S_0 (R/\Lambda) + S_0 (\xi/\Lambda) \right] \quad (3.73)$$

onde R é a dimensão da amostra.

onde para $x = R/\Lambda \gg 1$

$$N_0 (R/\Lambda) - S_0 (R/\Lambda) = \frac{2}{\pi} \left[\frac{1}{x} - \frac{1}{x^3} + \frac{1^2 \cdot 2}{x^5} + \right. \\ \left. - \frac{1^2 \cdot 3^2 \cdot 5^2}{x^7} + \dots \right] = 0 \quad (3.74)$$

e $S_0(\xi/\Lambda) \approx 0$ para $\xi/\Lambda \ll 1$, como visto anteriormente

$$N_0(\xi/\Lambda) \approx \frac{2}{\pi} \left[\ln \xi/2\Lambda + \gamma \right] \quad (3.75)$$

onde $\gamma = 0,577216$ é a constante de Euler-Mascheroni.

Portanto, a forma assintótica de ΔF_{vort} é expressa como:

$$\begin{aligned} \Delta F_{\text{vort}} &= \pi d \xi^2 \left(\frac{H_{CB}^2}{8\pi} \right) + \frac{2}{\pi} \left[-\ln \xi/2\Lambda - \gamma \right] (\phi_0^2/16\pi\Lambda) \\ \Delta F_{\text{vort}} &= \pi d \xi^2 \left(\frac{H_C^2}{8\pi} \right) + \frac{\phi_0^2}{8\pi\Lambda} \left[-\ln(\xi/2\Lambda) - \gamma \right] \\ \Delta F_{\text{vort}} &= \pi d \xi^2 \left(\frac{H_C^2}{8\pi} \right) + \frac{\phi_0^2}{8\pi\Lambda} \left[\ln(2\Lambda/\xi) - \gamma \right] \\ &= \pi d \xi^2 \left(\frac{H_C^2}{8\pi} \right) + \frac{\phi_0^2}{8\pi\Lambda} \left[\ln \left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right) - \gamma \right] \\ &= \frac{1}{4} \left(\frac{\phi}{4\pi} \right)^2 \frac{d}{\lambda^2} + \left(\frac{\phi_0}{4\pi} \right)^2 \frac{d}{\lambda^2} \left[\ln \left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right) - \gamma \right] \\ &= \left(\frac{\phi_0}{4\pi} \right)^2 \frac{d}{\lambda^2} \left[\ln \left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right) - \gamma + \frac{1}{4} \right] \quad (3.76) \end{aligned}$$

a expressão acima (3.76), é a proposta por Turkevich¹⁵ para a energia de excitação de vórtices

3.3.1 - Distância quadrática média de separação de vórtice isolado

Seguindo o procedimento descrito por Kosterlitz-Thouless, Turkevich¹⁵ também calculou a distância média quadrática

de separação entre um vórtice e seu antivórtice associado, utilizando a relação

$$\langle r^2 \rangle = \frac{\int dA r^2 \exp(-\beta E_{\text{par}}(r))}{\int dA \exp(-\beta E_{\text{par}}(r))} \quad (3.77)$$

com a temperatura de Kosterlitz-Thouless definida por:

$$K_B T_{KT} = \left(\frac{\phi_0}{4\pi} \right)^2 \left(\frac{d}{2\lambda^2} \right) \quad (3.78)$$

onde
$$E_{\text{par}} = \left(\frac{\phi_0}{4\pi} \right)^2 \left(\frac{2d}{\lambda^2} \right) \left[\ln(r/\xi) + \frac{1}{4} \right]$$

e da definição de T_{KT} de (3.78), a expressão de E_{par} pode ser reescrita:

$$E_{\text{par}} = 4 k T_{KT} \left[\ln(r/\xi) + \frac{1}{4} \right] \quad (3.79)$$

que substituída na expressão de r^2 , resulta:

$$\begin{aligned} \langle r^2 \rangle &= \frac{\int_{\xi}^{\infty} r^2 e^{-\beta 4 k T_{KT} \left[\ln(r/\xi) + \frac{1}{4} \right]} e^{-\beta 4 k T_{KT} \frac{1}{4}} 2\pi r dr}{\int_{\xi}^{\infty} e^{-\beta 4 k T_{KT} \left[\ln(r/\xi) + \frac{1}{4} \right]} e^{-\beta 4 k T_{KT} \frac{1}{4}} 2\pi r dr} \\ &= \frac{\int_{\xi}^{\infty} r^3 e^{-4(T_{KT}/T) \left[\ln(r/\xi) + \frac{1}{4} \right]} dr}{\int_{\xi}^{\infty} r e^{-4(T_{KT}/T) \left[\ln(r/\xi) + \frac{1}{4} \right]} dr} \\ &= \frac{\int_{\xi}^{\infty} r^3 (r/\xi)^{-4 T_{KT}/T} dr}{\int_{\xi}^{\infty} r (r/\xi)^{-4 T_{KT}/T} dr} \\ &= \frac{\left[\frac{r^4}{4} - \frac{4 T_{KT}/T}{4} r \right]_{r=\xi}^{\infty}}{\left[\frac{r^2}{2} - \frac{4 T_{KT}/T}{2} r \right]_{r=\xi}^{\infty}} \end{aligned}$$

$$\langle r^2 \rangle = \frac{\xi^2 (T_{KT} - \frac{1}{2} T)}{(T_{KT} - T)} \quad (3.80)$$

3.3.2 - Densidade de vórtices n_V

Em prosseguimento, Turkevich, também obteve a densidade n_V de vórtices, através da relação:

$$n_V = \frac{1}{\pi \xi^2} e^{-\beta E_V} \quad (3.81)$$

($\equiv$ probabilidade de haver um vórtice em área $\pi \xi^2 \sim$ área do vórtice).

$$\begin{aligned} \text{onde, } E_V &= \left(\frac{\phi_0}{4\pi} \right)^2 \frac{d}{\lambda^2} \left[\ln \left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right) - \gamma + \frac{1}{4} \right] \\ &= 2 k T_{KT} \left[\ln \left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right) - \gamma + \frac{1}{4} \right] \end{aligned} \quad (3.82)$$

portanto:

$$\begin{aligned} n_V &= \frac{1}{\pi \xi^2} e^{-\frac{1}{kT} 2k T_{KT} \left[\ln \left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right) - \gamma + \frac{1}{4} \right]} \\ &= \frac{1}{\pi \xi^2} e^{-2 T_{KT}/T \left[\ln \left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right) - \gamma + \frac{1}{4} \right]} \\ &= \frac{1}{\pi \xi^2} e^{-\ln \left[\left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right)^2 \frac{T_{KT}}{T} \right]} e^{2 T_{KT}/T (\gamma - \frac{1}{4})} \\ &= \frac{1}{\pi \xi^2} e^{\ln \left[\left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right)^{-2} \frac{T_{KT}}{T} \right]} e^{2 T_{KT}/T (\gamma - \frac{1}{4})} \\ n_V &= \frac{1}{\pi \xi^2} \left[\left(\frac{4\lambda^2}{\xi d} \right)^{-2} \frac{T_{KT}}{T} \right] e^{2 T_{KT}/T (\gamma - \frac{1}{4})} \end{aligned} \quad (3.83)$$

3.3.3 - Densidade de dipolos

A expressão densidade de dipolos (vórtice-antivórtice) calculada por Turkevich, provém da relação:

$$n_{\text{dip}} = \frac{1}{2\pi\xi^2} \int \frac{dA e^{-\beta E(r/\xi)}}{\pi\xi^2} \quad (3.84)$$

onde $DA = r d\theta r dr$ é o elemento de área

$$\int dA = \int_0^{2\pi} d\theta \int r dr = 2\pi \int r dr$$

mais, explicitamente:

$$\begin{aligned} n_d &= \frac{1}{2\pi\xi^2} \int_{\xi}^{\infty} \frac{2\pi r dr}{\pi\xi^2} e^{-\frac{1}{kT} 4k T_{KT} \ln\left[r/\xi + \frac{1}{4}\right]} \\ &= \frac{1}{2\pi\xi^2} \int_{\xi}^{\infty} \frac{2\pi}{\pi\xi^2} r dr (r/\xi)^{-4 T_{KT}/T} e^{-T_{KT}/T} \\ &= \frac{1}{2\pi\xi^2} \int_{\xi}^{\infty} \frac{2\pi}{\pi\xi} r^{(1-4 T_{KT}/T)} \xi^{4 T_{KT}/T} e^{-T_{KT}/T} dr \\ n_d &= \frac{1}{2\pi\xi^2} e^{-T_{KT}/T} \frac{2\pi}{\pi\xi^2} \xi^{4 T_{KT}/T} \left[\frac{r^2 - 4 T_{KT}/T}{2 - 4 T_{KT}/T} \right]_{\xi}^{\infty} \\ &= \frac{1}{2\pi\xi^2} e^{-T_{KT}/T} \frac{2\pi}{\pi} (-1) \frac{\xi^2 - 4 T_{KT}/T}{\xi^2 - 4 T_{KT}/T (2 - 4 T_{KT}/T)} \\ &= \frac{1}{2\pi\xi^2} e^{-T_{KT}/T} \frac{2}{4 T_{KT}/T - 2} \end{aligned}$$

que pode ser reescrita na forma obtida por Turkevich¹⁵, como

$$n_d = \frac{1}{2\pi\xi^2} e^{-T_{KT}/T} \frac{T}{2 T_{KT} - T} \quad (3.85)$$

Observação: A expressão (3.85) acima, será utilizada para análise de dados experimentais. (Capítulo IV).

CAPÍTULO IV

4.1 - Dados experimentais e análise

As medidas de atenuação de ondas acústicas superficiais em filmes finos supercondutores (granulares) de chumbo, depositados sobre substrato de LiNbO_3 , corte XY, foram efetuadas em diferentes frequências (de 550 MHz a 725 MHz), em função da temperatura. O filme granular de chumbo foi depositado seguindo o procedimento descrito no capítulo II.

A amostra PbO-1, possui espessura de cerca de $400 \text{ \AA}$, 10mm de comprimento e 6mm de largura.

A atenuação de OAS foi medida para diferentes potências de rádio-frequência (na faixa de 1 mW a 15 dB abaixo de 1 mW, para diferentes frequências de 550 MHz (figura 18), 600 MHz (figura 19), 675 MHz (figura 20), 700 MHz (figura 21) e 725 MHz e com a temperatura da amostra variando no intervalo de 1,5 K a 18 K, o arranjo utilizado para a geração e detecção de OAS se encontra descrito no capítulo II, bem como a descrição do controlador de temperatura.

Com o objetivo de evitar problema de deriva na operação de equipamento eletrônico (tais como o gerador de ultra alta frequência - UHF e a unidade misturadora de sinais), todo o sistema foi submetido a aquecimento preliminar de pelo menos 72 (setenta e duas) horas antes de efetuarmos as medidas de atenuação de OAS, com a utilização de linhas de ajustes de impedância, para melhorar a transmissão de sinais, recurso este necessário no caso de transdutor depositados em substratos de quartzo.

Figura 18- Atenuação de onda acústica superficial (PbO-1) $f=550$ MHz

Figura 19- Atenuação de onda acústica superficial (PbO-1) $f = 600 \text{ MHz}$

Figura 20- Atenuação de onda acústica superficial (PbO-1) $f = 6.75 \text{ MHz}$

Figura 21.a - Resistência de filme PbO-1

Figura 21.b - Atenuação de OAS relativa

Figura 22- Atenuação normalizada de OAS ($f=700$ MHz) e resistência normalizada (PbO-1)

Para efetuarmos as medidas de atenuação, a amostra foi submetida a aquecimento de 1,5 K a 18 K, com variação contínua de temperatura da duração de cerca de 20 (vinte) minutos. Este procedimento foi utilizado para testar a reprodutibilidade das medidas.

Simultaneamente a medida de atenuação de OAS, foi obtida a medida de resistividade do filme fino, através do emprego do método de quatro terminais, para determinar a temperatura crítica supercondutora (figura 4.4).

A resistividade do filme granular de chumbo, pode ser ajustada a um valor adequado através de sua exposição ao ar, a fim de obter maior oxidação de suas partículas (grãos) à temperatura ambiente, ou submetido ao aquecimento sob exposição de luz infravermelha. Para estabilizar a resistividade, a amostra é submetida a resfriamento a vácuo, à temperatura de nitrogênio líquido. Com este procedimento, as amostras de filmes finos de chumbo apresentaram resistividades constantes por mais de 6 (seis) meses ($\sim 1 \text{ k}\Omega/\square$).

4.2 - Dados de PbO - 1

4.2.1 - PbO - 1 depositado sobre LiNbO₃ - yz

Para efeitos de análise de dados, consideramos a atenuação de OAS para a frequência de 700 MHz (figura 21) que apresentou maior variação próxima à temperatura $T_c \sim 6,7 \text{ K}$, que é a temperatura crítica de transição supercondutora. Esta frequência de 700 MHz, corresponde a frequência fundamental dos transdutores interdigitais utilizados.

Em frequência de 725 MHz a curva da atenuação relativa em função da temperatura apresentou aspecto diferente daquele obtido para a frequência de 700 MHz, possivelmente devido à interferência entre dois modos, um correspondente a OAS e outro correspondente ao modo que propaga através do volume ("bulk skin mode").

A atenuação de OAS em 700 MHz (figura 21), é muito maior que o valor da atenuação produzida pela interação eletron fonon, descrito por Pippard²⁴ em sua teoria. Para o filme fino de chumbo, de 500 Å de espessura e resistividade de 1000 $\Omega/\square$, a atenuação calculada, considerando-se este tipo de interação, seria de $2,7 \times 10^{-2}$ dB/cm. Este cálculo foi efetuado utilizando a expressão obtida por Snider, Fredricksen e Schneider²⁵.

Os referidos autores, obtiveram a expressão de atenuação válida para o limite $kh \ll 1$; expresso como:

$$\alpha = A \eta kh \quad (4.1)$$

onde: η é a viscosidade dada por $\eta = \frac{3}{5} Nm v_F^2 \tau = \frac{3}{r} Nm v_F \ell$

A é a constante que depende sobretudo dos parâmetros do material

K é o vetor de onda

h é a espessura do filme

N é a concentração de elétrons

m é a massa do elétron

v_F é a velocidade de Fermi

ℓ é o caminho livre médio do elétron

Para a amostra considerada, o produto $kh = 6,4 \times 10^{-2}$

que resulta um valor da atenuação $\alpha = 0,21 \text{ dB/m}$, obtida da relação (4.1).

Para a determinação de η para a amostra PbO - 1, assumimos o valor do caminho livre médio do elétron igual a $270 \text{ \AA}$, empregando-se o critério discutido por Tachiki e outros²⁶. Sugeriram que num filme metálico, o caminho livre médio relevante para a determinação do valor de atenuação, é o caminho livre médio do elétron nos grãos metálicos e não menor que o obtido da resistividade elétrica. Assumindo-se que o caminho livre médio é dado pelo espalhamento difuso sobre a superfície de uma esfera, obtiveram $\bar{\ell} = \frac{2}{3} d$, onde d é o diâmetro da esfera. Do trabalho de Vanderberg, Nakahara e Hebard²⁷, estimamos que as dimensões dos grãos devem variar de 200 a $600 \text{ \AA}$. Se tomarmos $d=400 \text{ \AA}$, temos $\bar{\ell} = 270 \text{ \AA}$.

A viscosidade η é dada por:

$$\eta = \frac{3}{5} (13,2 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}) (9,1 \times 10^{-31} \text{ kg}) (1,83 \times 10^6 \text{ m/s})$$

$$(270 \times 10^{-10} \text{ m}) = 35,6 \times 10^{-4} \text{ poise}$$

Portanto, a atenuação para a amostra PbO - 1, seria:

$$\begin{aligned} \alpha &= \frac{\eta}{\eta_T} \alpha_T \\ &= \frac{(35,6 \times 10^{-4})}{(2,75 \times 10^{-4})} \cdot (0,21 \text{ dB/m}) \\ &= 2,7 \times 10^{-2} \text{ dB/cm} \end{aligned} \quad (4.2)$$

O valor da atenuação acima é de duas ordens de grandeza menor que o observado experimentalmente (figura 21). Isto é a atenua

ção próxima à $T = T_c$ é de $\alpha = 4,4$ dB/cm.

Ao invés da suposição acima, cremos que a atenuação no estado normal aparece piezoeletricamente induzida, seguindo o mecanismo sugerido pelo modelo de Adler⁷, descrito no capítulo III. No estado normal, a atenuação piezoeletricamente induzida é dada pela relação (3.14):

$$\alpha = \frac{K^2}{v_s} \frac{\omega}{2} \frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2}$$

onde K^2 é o fator de acoplamento eletromecânico do substrato piezoelétrico, v_s é a velocidade da onda acústica superficial, ω é a frequência angular e τ o tempo de relaxação que pode ser obtido da expressão seguinte:

$$\omega \tau = v_s (\epsilon + \epsilon_0) R_d$$

onde ϵ e ϵ_0 são as constantes dielétricas do substrato e vácuo respectivamente e R_d a resistividade do filme fino. No limite quando R_d se aproxima a zero, as cargas induzidas no filme acompanham, em fase, o campo elétrico que viaja através do substrato piezoelétrico e não há absorção de energia. Para $R_d \rightarrow \infty$, onde não há cargas induzidas, novamente a atenuação é nula.

Para valores intermediários de R_d , as cargas induzidas estarão fora de fase com os campos elétricos do substrato, absorvendo energia da onda acústica superficial. As cargas induzidas de fase em atraso, serão arrastadas no meio dissipativo.

O tempo de relaxação τ está associado (analogicamente) com o de um circuito RC. A resistividade do filme atua como R e o atraso em fase associado ao elemento C.

No caso do filme considerado (PbO - 1):

$$\omega\tau = 9,9 \times 10^{-4} \quad (4.3)$$

e portanto, a atenuação é dada por:

$$\alpha \approx \omega K^2 (\epsilon + \epsilon_0) R \quad (4.4)$$

onde, $\epsilon = 30 \epsilon_0$, para o substrato de LiNbO_3 e $K^2 = 0,045$, o que resulta:

$$\alpha \approx 2,3 \text{ dB/cm}$$

Este valor é comparável ao observado experimentalmente (figura 21), onde $\alpha \approx 4,4 \text{ dB/cm}$.

Podemos observar que o valor previsto para a atenuação está sujeito a erro dependente da determinação de R . Em nosso caso, a resistividade do filme fino é dada pela relação:

$$R = R \frac{W}{\ell}$$

onde R é a resistência medida entre os terminais utilizados para a medida de tensão (figura 4), distante de $\ell = (2,0 \pm 0,3) \text{ mm}$ um em relação ao outro. Observando-se que o erro é limitado pela incerteza na determinação da largura dos terminais, isto é, igual a $0,3 \text{ mm}$.

Enquanto que a largura do filme era de $(6,00 \pm 0,05) \text{ mm}$.

A resistividade do filme é dada por:

$$R = R \frac{W}{\ell} = (1,0 \pm 0,2) \text{ k}\Omega/\square \quad (4.5)$$

o que afeta a pressão no valor previsto de atenuação de 20% de incerteza.

Esta incerteza poderia ser diminuída, aumentando-se a

distância entre os terminais utilizados para as medidas de resistência do filme. A referida distância é limitada pelo comprimento físico do filme. Porém, ainda que a medida em R seja melhorada para valores de resistividades mais baixos ($< 1 \text{ M}\Omega/\square$), os valores experimentais de atenuação são maiores que os previstos pelo modelo de Adler⁷. Por exemplo, Hemphill¹¹ determinou a atenuação de OAS em função de $R_{\square}$, encontrando valores experimentais de atenuação em filmes finos de prata maiores que os previstos pelo modelo de Adler para resistividades menores que $1 \text{ M}\Omega/\square$. Estas discrepâncias podem surgir em consequência da simplicidade do modelo que não envolve qualquer mecanismo microscópico para baixas resistividades de filme fino. Isto constitui ainda um problema aberto e necessita de melhor formulação teórica para sua explicação.

4.2.2 - Atenuação de OAS para $T < T_C$

De acordo com a expressão da atenuação DE OAS, discutida até o presente, o valor da atenuação deveria ser proporcional a resistividade do filme fino. Isto é, se considerarmos a curva da resistividade para temperaturas, $T < T_C$, a atenuação de OAS deveria diminuir suavemente até para zero no estado supercondutor (figura 21). Todavia, a curva da atenuação de OAS (figura 21) apresenta valor residual, mesmo abaixo da temperatura crítica T_C , supercondutora, o que foi atribuído por Teji^{ma}, H.; Schmidt, J.; Figura, C. e Levy, M.²⁸, à presença de dipolos vórtice-antivórtice descrito por Kosterlitz e Thouless². As regiões dos caroços destes vórtices e antivórtices correspondem as porções do filme no estado normal.

Portanto, se assumirmos que a atenuação de OAS é proporcional à resistividade localmente existente, os caroços (no

estado normal) dos dipolos vórtice-antivórtice devem produzir uma atenuação proporcional às suas áreas.

A razão da área (no estado normal) ocupada pelos pares vórtice-antivórtice para a área total pode ser obtida através da expressão obtida por Turkevich¹⁵ para a densidade de dipolos vórtice-antivórtice:

$$f_o = \frac{A \text{ (normal)}}{A \text{ (total)}} = \frac{T}{2 T_{KT} - T} \exp - \frac{T_{KT}}{T} \quad (4.6)$$

onde $f_o = n_D (2\pi\xi^2)$

n_D : é a densidade de dipolos vórtice-antivórtice dada pela expressão (3.85)

ξ : é o raio do caroço do vórtice

A temperatura de transição supercondutora foi determinada como $T_\ell = 6,7$ K, foi determinada como posição de máxima inclinação, tanto dos dados de atenuação de OAS e da resistência (figuras 21.a e 21.b). Os dois conjuntos de dados fornecem a temperatura de transição, sendo que uma delas 0,01 K deslocada em relação a outra.

Utilizando-se a expressão (3.59) a temperatura T_{KT} , obtida por Beasley e outros:

$$\frac{T_{KT}}{T_C} = \left[1 + 0,173 \frac{R}{R_C} \right]^{-1}$$

onde $R_C = 4,12 \text{ k}\Omega/\square$ é uma constante.

Para o caso da amostra, PbO - 1, $R \approx 1 \text{ k}\Omega/\square$, o que resulta a temperatura de transição de Kosterlitz-Thouless de $T_{KT} = 0,96 T_C$.

É interessante observar que a curva de atenuação de OAS, apresenta maior inclinação em $T = 0,953 T_C$, (figura 22).

Substituindo-se o valor calculado de T_{KT} , na equação (4.6), a mesma pode ser expressa como:

$$f_o = \frac{A \text{ (normal)}}{A \text{ (total)}} = \frac{t}{1,92 - t} \exp - \frac{0,96}{t} \quad (4.7)$$

onde $t = T/T_C$ é a temperatura reduzida. A atenuação de OAS normalizada no estado supercondutor, deveria ser igual a esta quantidade sem qualquer parâmetro ajustável.

Na figura (21), temos as curvas de atenuação reduzida (α_s/α_n) e de resistência do filme em função da temperatura, como também a curva correspondente a expressão teórica (equação 4.7) para a atenuação no estado supercondutor. A referida curva teórica prevê aproximadamente, a ordem de grandeza correta para a atenuação residual no estado supercondutor de $t = 0,3$ a $t = 0,8$. Nesta região, a diferença entre as duas curvas pode ser uma indicação da existência de um mecanismo que pode estar produzindo uma atenuação adicional. As ondas acústicas superficiais podem produzir oscilações na separação de vórtices que poderiam resultar nesta atenuação. Por exemplo, as cargas induzidas poderiam ser conduzidas pela onda superficial e uma força de Lorentz que por sua vez produziria forças alternadas nas linhas de fluxo dos pares, que podem oscilar em uma dada direção ou girar um em relação ao outro.

Em ambos os casos, é esperado que o movimento fique fora de fase com o sinal de excitação imposto o que consequentemente seria dissipativo. O movimento de cargas dentro das linhas de fluxo podem experimentar perdas por corrente de Foucault, isto é, os campos magnéticos dentro das linhas de fluxo podem

ter a curvatura as trajetórias tomadas pelas cargas induzidas. Isto poderia resultar em uma resistência adicional que aumentaria a atenuação.

Obtivemos curvas de atenuação de OAS, em função da temperatura para diferentes intensidades de corrente contínua (0; 0,1; 1; 100 e 1000 μA) injetadas através dos terminais de medidas de resistência, bem como para diferentes potências de rádio-frequência (de 0,3 a 1 mW) aplicadas aos terminais do transdutor interdigital. Observou-se que não houve, aparentemente, dependência significativa da atenuação, tanto com a intensidade de corrente quanto com a potência de rádio-frequência.

A resposta da atenuação à resistência local pode depender sobretudo do defasamento das cargas induzidas. Este defasamento calculado é dado por:

$$\psi = v_s \tau = 8 \text{ \AA} \quad (4.8)$$

onde
$$\tau = \frac{9,9 \times 10^{-4}}{\omega}$$

Estimamos ξ_0 sendo de 37 $\text{\AA}$ em T_{KT} e 8 $\text{\AA}$ em OK. O caminho livre médio (estimado pela resistividade do filme) é de aproximadamente 0,1 $\text{\AA}$. Este valor é menor que o espaçamento interatômico do chumbo. Kadin, Epstein e Goldman²¹ mostraram que poderiam utilizar tais valores para determinar o comprimento de coerência para filmes homogêneos de ligas de Hg-Xe.

Se utilizarmos a metade do valor do espaçamento interatômico para o caminho livre médio, deveríamos obter $\xi_0 = 39 \text{ \AA}$

em $T = 0\text{K}$. Em ambos os casos, o atraso de fase deve ser menor que o diâmetro dos caroços de vórtices. Acredita-se que desde o atraso de fase de cargas induzidas esteja contido dentro de uma linha de fluxo particular, o modelo é aplicável.

Para temperatura reduzidas superiores a $t = 0,8$, os valores teóricos de atenuação começam a divergir dos dados, sendo que a discrepância se torna maior em T_c . Um pequeno patamar ocorre em $t = 0,8$. Turkevich¹⁵ obteve uma expressão para a separação quadrática média entre um vórtice e seu par antivórtice.

$$\begin{aligned} \langle r^2 \rangle &= \xi^2 \frac{(T_{KT} - \frac{1}{2} T)}{(T_{KT} - T)} \\ &= \xi^2 \frac{(0,96 - \frac{1}{2} t)}{(0,96 - t)} \end{aligned} \quad (4.9)$$

onde ξ é a distância de coerência e t é a temperatura reduzida.

Da expressão (4.9), $\langle r^2 \rangle < 4\xi^2$ para $t < 0,82$, se assumirmos que a área dos dipolos é reduzida pela superposição de vórtices, obteremos uma curva que está cerca de 7% abaixo da curva tracejada (figura 22), que é o ponto de maior desvio.

4.2.3 - Atenuação de OAS normalizada para diferentes frequências

Para efeitos de comparação, foram obtidos dados de atenuação de OAS para frequência de 550 MHz (figura 23), 600 MHz (figura 24), 675 MHz (figura 25) e 700 MHz (figuras de traço contínuo).

As curvas de atenuações normalizadas, obtidas para diferentes frequências, foram traçadas em comparação com a obtida

Figura 23- Atenuação normalizada, $f=550$ MHz (em pontilhado) $\circ$
Atenuação normalizada, $f=700$ MHz (em contínuo)

Figura 24- Atenuação normalizada, $f=600$ MHz (pontilhado)
Atenuação normalizada, $f=700$ MHz (contínuo)

Figura 25- Atenuação normalizada, $f=675$ MHz (pontilhado)
Atenuação normalizada, $f=700$ MHz (contínuo)

na frequência fundamental de 700 MHz, (linha contínua). Observa-se que não há diferença substancial entre as atenuações reduzidas, havendo boa concordância entre as curvas obtidas para $f = 550$ MHz e $f = 700$ MHz.

4.3 - Dados de Pb-5

4.3.1 - Pb depositado em substrato de quartzo - corte ST

A amostra Pb-5, de $1000 \text{ \AA}$ de espessura e resistividade de filme fino $R = 3,6 \text{ } \Omega/\square$, foi depositada em um substrato de quartzo, de corte ST. Os transdutores interdigitais utilizados para a produção de OAS, eram dotados de 32 eletrodos. Portanto, de características mais sintonizadas que os depositados em substratos de LiNbO_3 que possuíam 10 elementos ou eletrodos.

A configuração dos eletrodos de platina utilizados para medidas de resistência do filme é a mesma que a utilizada para a amostra PbO-1.

Para a obtenção da amostra Pb-5, por "sputtering", foi utilizado apenas gás argônio durante a deposição, a fim de se obter filme de chumbo de alta pureza. A tensão de polarização do catodo para a deposição da referida amostra foi fixada em 2,4 kV.

As dimensões do filme de forma retangular era de 7,0 mm de comprimento por 5,0 mm de largura, foram limitadas pelo espaço existente entre os dois transdutores previamente depositados sobre o substrato.

Figura 26 - Resistência do filme Pb-5

Figura 27 - Atenuação relativa - $f=580 \text{ MHz}$

4.3.2 - Atenuação de OAS no filme Pb-5

A curva de atenuação de OAS em função da temperatura, (figura 27), que apresentou maior variação de atenuação, foi obtida para a frequência de 580 MHz, sendo que o valor desta atenuação foi de aproximadamente 0,07 dB, próxima à temperatura de transição T_C .

Para efeitos de observação da temperatura T_C , foi obtida simultaneamente a variação da resistência do filme (figura 26).

De acordo com os cálculos de atenuação devido à interação elétron-fonon (expressão 4.2), efetuada anteriormente, para a amostra PbO-1, o caminho livre médio do elétron de $270 \text{ \AA}$ resulta em uma atenuação de $2,7 \times 10^{-2} \text{ dB/cm}$, para a espessura do filme de $500 \text{ \AA}$, à frequência de OAS de 700 MHz.

Se a espessura do filme é de $1000 \text{ \AA}$, como é no caso do filme Pb-5, a atenuação deveria ser igual a $5,4 \times 10^{-2} \text{ dB/cm}$.

Foi calculado anteriormente que o caminho livre médio do elétron, para resistividade de filme $R = 1000 \text{ } \Omega/\square$ é $0,1 \text{ \AA}$, para espessura de $500 \text{ \AA}$.

Das relações seguintes:

$$R = \frac{\rho}{W} \frac{\ell}{t} = \left(\frac{\ell}{W}\right) \frac{1}{\sigma t} \quad (4.10)$$

$$R = \frac{1}{\sigma t}$$

$$\sigma = \frac{1}{R t}$$

$$\sigma = \frac{Ne^2}{m} \quad (4.11)$$

Temos a relação:

$$\tau = \frac{\sigma m}{Ne^2} = \frac{m}{Ne^2} \frac{1}{R t} \quad (4.12)$$

Se considerarmos a relação (4.12), podemos considerar para dois filmes de diferentes espessuras e resistividades de filme, a relação:

$$\frac{\tau_1}{\tau_2} = \frac{(R_2 t_2)}{(R_1 t_1)} = \frac{\ell_1}{\ell_2}$$

ou

$$\ell_2 = \frac{R_1 t_1}{R_2 t_2} \ell_1 \quad (4.13)$$

Para a amostra Pb-5 teremos:

$$R = 1,2 \times 3 = 3,6 \, \Omega/\square$$

$$t = 1000 \, \text{\AA}$$

$$\ell_1 = 0,1 \, \text{\AA}$$

que resulta:

$$\ell_2 = \frac{(1000 \, \Omega/\square) (500 \, \text{\AA})}{(3,6 \, \Omega/\square) (1000 \, \text{\AA})} \times 0,1 \, \text{\AA}$$

$$\approx 14 \, \text{\AA} \quad (4.14)$$

Portanto, sendo a atenuação proporcional a ℓ , temos:

$$\frac{\alpha_1}{\alpha_2} = \frac{\ell_1}{\ell_2}$$

isto é:

$$\alpha_2 = \alpha_1 \frac{\ell_1}{\ell_2} \quad (4.15)$$

onde

$$\ell_1 = 270 \text{ \AA}$$

$$\ell_2 = 14 \text{ \AA}$$

$$\alpha_1 = 2,7 \times 10^{-2} \text{ dB/cm}$$

portanto,

$$\begin{aligned} \alpha_2 &= (2,7 \times 10^{-2} \text{ dB/cm}) \frac{14 \text{ \AA}}{270 \text{ \AA}} \\ &= 1,4 \times 10^{-3} \text{ dB/cm} \end{aligned}$$

Se assumirmos que o caminho livre médio é maior que $\ell_2 = 14 \text{ \AA}$, devido à resistência determinada pelo espalhamento entre os grãos, então poderíamos assumir que o caminho livre médio é determinado pela dimensão do grão. Neste caso, os grãos poderiam ser de $1000 \text{ \AA}$ em dimensão:

Portanto,

$$\ell = \frac{2}{3} d \approx 666 \text{ \AA} \quad (4.16)$$

e

$$\alpha_2 = 2,7 \times 10^{-2} \text{ dB/cm} \times \frac{666 \text{ \AA}}{270 \text{ \AA}}$$

ou seja

$$\alpha_2 = 6,6 \times 10^{-2} \text{ dB/cm}$$

ou melhor,

$$\alpha_2 = 0,067 \text{ dB/cm}$$

Observando-se a figura (27), melhor dado de atenuação de OAS, para a amostra Pb-5, verificamos que a atenuação pe maior. Dos cálculos anteriores em 700 MHz, esperávamos a atenuação de 0,067 dB/cm. Em 580 MHz, a atenuação deveria ser menor, devido à sua dependência em ω^3 , o que resulta no fator:

$$\left(\frac{\omega_1}{\omega_2}\right)^3 = \left(\frac{700}{580}\right)^3 = 1,72 \quad (4.17)$$

Portanto, ao invés de $\alpha_2 = 0,067 \text{ dB/cm}$, deveríamos ter

$$\alpha'_2 = \frac{0,067}{1,72} \text{ dB/cm} = 0,039 \text{ dB/cm} \quad (4.18)$$

Uma outra forma de interpretação dos dados de Pb-5 é afirmar que $\ell_2 \neq 666 \text{ \AA}$, porém igual à:

$$\ell'_2 = 666 \text{ \AA} \times \frac{0,07}{0,039} \approx 1200 \text{ \AA} \quad (4.19)$$

Nesta amostra, a variação da atenuação de OAS devido à inibição piezoelétrica, deveria ser de aproximadamente

$$\begin{aligned} \alpha &= 4,4 \text{ dB/cm} \times \frac{3,6 \text{ } \Omega/\square}{1000 \text{ } \Omega/\square} \\ &= 1,6 \times 10^{-2} \text{ dB/cm} \\ &= 0,016 \text{ dB/cm} \end{aligned} \quad (4.20)$$

valor este que pode ser subtraído do observado na figura (4.10) ou seja: $\alpha' = 0,07 - 0,016 = 0,054 \text{ dB/cm}$

e o novo ℓ seria:

$$\ell' = 666 \text{ \AA} \times \frac{0,054}{0,039} \approx 920 \text{ \AA} \quad (4.21)$$

que possivelmente é o novo caminho livre médio para Pb-5.

CAPÍTULO V

CONCLUSÃO

5.1. - Medidas de OAS

As medidas de atenuação de onda acústica superficial foram efetuadas em filmes finos granulares supercondutores de Pb e PbO, em função da temperatura (de 1,5 K a 20 K).

Da amostra PbO-1, de resistividade de filme fino de $1 \text{ k}\Omega/\square$ e $500 \text{ \AA}$ de espessura, obtivemos medidas de atenuação de OAS, na faixa de frequências de 550 MHz a 700 MHz para diferentes potências do gerador de rádio-frequência (10 mW, 1 mW e 0,1 mW). Como resultado, observamos que a variação de atenuação de OAS, para temperaturas próximas a $T_c = 6,7 \text{ K}$, excede o valor correspondente à interação elétron-fonon, calculado por Snider, Schneider e Fredricksen.

Para temperaturas $T < T_c$, a existência de uma atenuação residual constitui um fenômeno intrigante. Ao observarmos as curvas de atenuação de OAS normalizada e da resistência normalizada para $T > 0,98 T_c$, notamos que a atenuação é proporcional à resistividade.

A propriedade acima, aliada à sensibilidade de detecção de OAS, torna conveniente a utilização da técnica de atenuação de OAS, produzidas com transdutores interdigitais depositados em substratos de LiNbO_3 para determinar a resistência localizada, mesmo com o filme no estado supercondutor, para filmes dotados de resistividade no estado normal superiores a $1 \text{ k}\Omega/\square$, fenômeno que não é diretamente detectável pela utilização de outras técnicas (medidas de resistividade DC ou AC, características corrente-tensão, etc).

A concordância dos dados de atenuação normalizada de OAS para temperaturas $T < T_c$, com os cálculos de densidade de dipolos de vórtice-antivórtice, obtidos por Turkevich, leva a reforçar que a atenuação de OAS constitui um método conveniente para a detecção direta da existência de pares de vórtices e antivórtices e da transição de Kosterlitz e Thouless em filmes finos supercondutores prevista por Beasley et al.

Por outro lado, as atenuações de OAS em filmes finos de chumbo de baixa resistividade, a temperaturas próximas a T_c , apresentam variação de atenuação que excede o valor teórico calculado por Snider et al. Dado que implica em existência de um mecanismo diferente para sua análise.

5.2. - Comentário e sugestões

Um dos efeitos mais intrigantes para filme de resistividade mais alta ($\sim 28 \text{ k}\Omega/\square$), quase no limite de condução metálica, foi obtido por H.P. Fredricksen ao medir a atenuação de OAS em filmes finos de NbN. Observa-se em seus dados que a temperatura em que ocorre a transição supercondutora (medida através de condutividade DC), difere consideravelmente daquela em que ocorre a variação brusca da atenuação de OAS.

Na tentativa de buscar uma análise para a amostra acima, tomamos o valor de T_{KT} , obtido por Beasley et al., para comparar os cálculos de Turkevich com os dados de atenuação normalizada, o que não resultou em acordo razoável.

Para futura experiência sugeriríamos medidas de atenuação de OAS, com o mesmo filme (PbO-1) variando-se gradativamente os valores de $R_\square$, entre $1 \text{ k}\Omega/\square$ e $30 \text{ k}\Omega/\square$, através do processo de oxidação. Os resultados experimentais possivelmente

serviriam para investigar as previsões feitas por Beasley et al para os valores de T_{KT} .

Uma investigação adicional sugerida de bastante interesse para a próxima etapa, seria em obter medidas de atenuação de OAS com aplicação de campo magnético, bem como medidas de resistividade AC com arranjo experimental mais apropriado.

O método de atenuação de OAS utilizado para análise de vórtice-antivórtice em filmes finos supercondutores depositados em substratos piezoelétricos de fator de acoplamento eletromecânico ($\text{LiNbO}_3 - \text{yz}$), em frequências de microondas, constitui um recurso valioso para investigar o fenômeno intrigante, como a transição prevista por Kosterlitz e Thouless.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. BEASLEY, M.R. & MOOIJ, J.E., Phys. Rev. Lett., 42 (17): 1165-68 (1979).
2. KOSTERLITZ, J.M. & THOULESS, D.J., J. Phys. C6, 1181-203 (1972).
3. HEBARD, A.F. & VANDERBERG, J.M., Phys. Rev. Lett, 44, 50 (1980).
4. CAMPBELL, J.J. & JONES, W.R., IEEE Trans. Sonics Ultrasonics 15, 209 (1963).
5. INGEBRITSEN, K.A., J. Appl. Phys., 40, 2681-86 (1969).
6. TSENG, C.C. & WHITE, R.M., J. Appl. Phys., 38, 4274 (1967).
7. ADLER, R., IEEE Trans. Sonics/Ultrasonics, 18, (3): 115 (1971).
8. RAYLEIGH, (Lord), London Math. Soc. Proc., 17, 4 (1887).
9. VIKTOROV, I.A., Rayleigh and Lamb Waves - Physical Theory and Applications (Plenum Press), N. York (1967).
10. SLOBODNIK, A.J.; CONWAY, E.D.; DELMONICO, R.T., Microwave Acoustic Handbook, 1A, Air Force Cambridge Research Laboratories (1973).
11. HEMPHILL, R.B., Ultrasonics Symposium Proc. 340 (1972).
12. AKAO, F., Phys. Lett., 30A, nº 7 (1969).

13. FREDRICKSEN, H.P., Ph.D. Thesis, UWM (1981).
14. MAEKAWA, S.; FUKUYAMA, H.; KOBAYASHI, S., Sol. St. Comm., 37, 45 (1980).
15. TURKEVICH, L.A. J. Phys. C 12, L 385 (1979).
16. TIERSTEN, H.F., J. Appl. Phys., 40, 770 (1969).
17. MORGAN, D.P.; ASH, E.A. e ENG, C., Proc. Inst. Engrs., 116, 1125 (1969).
18. SCHULZ, M.B. & MATSINGER, J.H. Appl. Phys. Letter, 20, 367 (1969).
19. NELSON, D.R. & KOSTERLITZ, J.M., Phys. Rev. Lett, 39, 1201 (1977).
20. KITTEL, C., "Introduction to Solid State Physics", McGraw Hill, 5^a ed., p. 374
21. ABRAMOWITZ & STEGUN, "Table of special functions", Dover Publ., p. 364, 1970.
22. TINKHAN, M., Introduction to Superconductivity, McGraw Hill N. York, 1975.
23. PEARL, J., Low Temp. Phys., 9, 566-70.
24. PIPPARD, A.B., Phil. Mag., 46, 1104 (1955).
25. SNIDER, D.R.; FREDICKSEN, H.P.; SCHNEIDER, S.C., J. Appl. Phys., 52, 3215, (1981).
26. TACHIKI, M.; SALVO, H.; ROBINSON, D.A.; LEVY, M., Sol. St. Comm., 17, 635 (1975).

27. VANDERBERG, J.M.; NAKAHARA, S.; HEBARD, A.F., J. Vac. Sci. Tech., 18, 268 (1981).
28. TEJIMA, H.; SCHMIDT, J.; FIGURA, C.; LEVY, M. (Comunicação privada).
29. KADIN, A.M.; EPSTEIN, K.; GOLDMAN, A.M. (comunicação privada).
30. SIGMUND, P., Phys. Rev., vol. 184, nº 2 (1969).
31. ECKERTOŮÁ, L. - "Physics of thin films", p. 18 - Traduzido por BRATINKA, P., publicado pela Plenum Pub. Co. e SNTL Praga, Tchoslavaquia (1977).
32. MATHIS, R.D. - "Operation Manual".