

ī,



1

!

.

ISS 72/6

ISTITUTO SUPERIORE DI SANITA' Laboratori di Fisica

E. DI CRESCENZO, P. L. INDOVINA, S. ONORI, A. ROGANI

Risposta elettromagnetica di film superconduttivi di Pb in funzione del campo magnetico nella regione delle microonde

Parte II

Roma, 28 aprile 1972

ISTITUTO SUPERIORE DI SANITA' Laboratori di Fisica

ISS 72/6

E. DI CRESCENZO, P. L. INDOVINA, S. ONORI, A. ROGANI - Risposta elettromagnetica di film superconduttivi di Pb in funzione del campo magnetico nella regione delle microonde. Parte II. (28Aprile, 1972).

Questo fascicolo è il secondo di due rapporti sullo studio delle proprietà magnetiche di film superconduttivi. I risultati ottenuti si inquadr<u>a</u> no nella teoria di Ginzburg-Landau e possono essere così riassunti: a) misure della dipendenza dei campi critici di volume H_{cF} al variare dello spessore e determinazione di una espressione semiempirica valida per ogni valore del rapporto $d/\lambda(t)$; b) dipendenza della lunghezza di penetrazione del campo magnetico dallo spessore; c) studio dell'ordine de<u>l</u> la transizione di fase in funzione del campo magnetico per vari spessori e temperature; d) determinazione della temperatura a cui si manifesta la superconduttività superficiale e relativo andamento al variare dello spessore.

ISTITUTO SUPERIORE DI SANITA' Laboratori di Fisica

ISS 72/6

E. DI CRESCENZO, P. L. INDOVINA, S. ONORI, A. ROGANI - Variation of t_{Hc3} with the film thickness. Part. II. (April 28, 1972).

This paper is the second of two reports concerning magnetic properties of superconducting film. Our results, which are in good agreement with the Ginzburg-Landau theory, will be summarized as follows: a) dependence of the critical magnetic field H_{cF} on the sample thickness; general semiempirical expression valid for any d/λ (t) ratios; b) variation of the penetration depth with the film thickness; c) study of the order of the phase-transition as a function of the magnetic field at various temperatures and sample thickness.

E. DE CRESCENZO, P. L. INDOVINA, S. ONORI, A. ROGANI

Risposta elettromagnetica di film superconduttivi di Pb in funzione del campo magnetico nella regione delle microonde

Parte II

In un lavoro precedente⁽¹⁾ abbiamo mostrato che il metodo di misura a sensibilità di fase, da noi sviluppato, risulta particolarmente sensibile per rivelare la presenza di uno stato superconduttivo superficiale. Questo stato superconduttivo esiste sulla superficie di un metallo per uno spessore dell'ordine di ξ (t), il range di coerenza del materiale considerato.

Nel caso dei campioni di Pb, è noto dalla letteratura⁽²⁾, che il valore teorico di ξ_0 è dell'ordine di 830 Å; inoltre dalle misure precedenti⁽¹⁾ abbiamo ricavato la lunghezza di penetrazione λ (0, d) del nostro campione, risultata pari a 445 Å. E' quindi molto interessante dal punto di vista concettuale determinare come le proprietà superconduttive di un materiale si modifichino quando una delle dimensioni del campione diminuisce in modo progressivo fino a divenire paragonabile con le lunghezze caratteristiche microscopiche del materiale stesso. Queste considerazioni ci hanno indotto a realizzare una serie di misure in un largo intervallo di spessori.

I campioni su cui abbiamo effettuato le misure possono essere suddivisi in due intervalli a seconda del loro spessore (d $\geq \sqrt{5} \lambda$ (t)) in rapporto all'ordine della transizione che si manifesta al valore del campo critico di volume $H_{c_{\rm F}}$.

L'intervallo in cui d > $\sqrt{5} \lambda$ (t), che per i nostri campioni equivale a d > ξ (t), può essere ulteriormente suddiviso; infatti, per d >> ξ (t) si è in grado di confrontare i nostri risultati, relativi al-l'andamento dei campi critici H_{c_F} con la temperatura, con la teoria G-L , mentre non esistono espressioni teoriche in un intervallo intermedio di spessori, $d \gtrsim \frac{1}{2}$ (t)

ln quest'ultimo intervallo abbiamo fatto uso di una relazione semiempirica che verrà precisata nel seguito.

1 - Limite $d \gg \xi(t)$

Nella figura l è presentata una famiglia di curve del tutto analoga a quella già mostrata⁽¹⁾ per il campione di spessore d = 15.000 Å, relativa però ad uno spessore d = 3600 Å. Come è possibile osservare le caratteristiche sono ancora dello stesso tipo, però la presenza di superconduttività superficiale non è così marcata come nel caso del campione esteso. Questo comportamento diviene ancora più eviden-



Fig.1 – Picchi di superconduttività registrati a varie temperature, per un film di Pb depositato su rame, di spessore d \approx 3600 Å. Le curve sono state normalizzate.

1.1.....1

te per campioni di dimensioni via via minori.

Abbiamo affrontato il problema di verificare se, come è ragionevole attendersi, la temperatura $t_{H_{C_3}}$ a cui la superconduttività superficiale è sperimentalmente rivelabile, dipenda dallo spessore del film. Nella figura 2 sono presentati i risultati di H' - H_{C_F} in fun zione della temperatura relativi al campione di spessore d = 3600 Å.

Come si può vedere la temperatura a cui nasce la supercondu<u>t</u> tività superficiale è $t_{H_{c_3}} = 0.697$ e quindi risulta minore rispetto a quella del campione di 15.000 Å.

Notiamo per inciso che ci siamo serviti di un metodo alternativo per la determinazione di $t_{H_{c_3}}$. A questo scopo abbiamo graficato direttamente la dipendenza di H' dalla temperatura; si può notare, ad una data t, in corrispondenza della quale H' assume il significato fisico di campo critico superficiale, e che coincide quindi con $t_{H_{c_3}}$, una brusca variazione nella pendenza della curva.

I valori delle temperature critiche determinati con i due metodi sono in generale in buon accordo tra di loro. Pur tuttavia il metodo a cui ci riferiremo in modo esplicito nel seguito, sarà quello connesso con la differenza $H^{i} - H_{c_{r}}$.

Abbiamo effettuato misure sui seguenti film che rispettano la condizione d >> ξ (t): 7000 Å, 6000 Å, 4500 Å, 3600 Å.

Nella Tabella(l)seguente, sono riportati i corrispondenti valori di $t_{H_{c_2}}$, determinati sperimentalmente.

| T | а | b | e | 1 | 1 | а | 1 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| _ | _ | - | - | _ | - | ~ | ~ |

| d | ^t Hc3 | λ (0, d) | | |
|------|------------------|----------|--|--|
| 7000 | 0.754 | 442 | | |
| 6000 | 0,747 | 445 | | |
| 4500 | 0.734 | 450 | | |
| 3600 | 0,697 | 447 | | |



 \mathfrak{J}

Fig.2 – Andamento con la temperatura di H'-H $_{\rm cl^{+}}$ per un campione di spessere d=3600 \times

-

A questo punto abbiamo proceduto ad una completa caratterizzazione delle proprietà dei campioni. L'andamento di H_{c_3} in funzio ne della temperatura è stato misurato per tutti i campioni e seguendo il criterio già descritto abbiamo potuto ricavare le lunghezze di penetrazione relative.

I risultati ottenuti sono presentati nella Tabella 1. L'errore da attribuire al parametro $\lambda(0, d)$ è valutato inferiore al 2%.

In figura 3 è presentata la dipendenza dalla temperatura di H_{c_3} per il campione di spessore d = 3600 Å.

Si è proceduto inoltre alla determinazione dell'andamento dei campi critici di volume H_{c_F} in funzione della temperatura. I risultati ottenuti per il film di spessore d = 3600 Å sono riportati in figura 4.

La curva a tratto continuo è stata ottenuta effettuando una interpolazione dei dati sperimentali con l'espressione:

$$H_{c_{F}}(t) = H_{c}(0) (1 - t^{2}) \left[1 + \alpha \frac{\lambda (0, d)}{d (1 - t^{4})^{1/2}} \right]$$
(1)

Nella interpolazione si è assunto come parametro il termine $\alpha \lambda (0, d)/d$. Poiché il valore di $\lambda (0, d)$ ci è già noto possiamo ricavare i valori di α .

Esaminando però, il comportamento dei campioni di spessore d = 7000 Å e d = 6000 Å abbiamo notato degli scostamenti nei campicritici H_{cF}, rispetto ai valori corrispondenti nel campione esteso,inferiori a qualche per cento. Ossia il comportamento di questi campioni è interamente spiegabile in termini di proprietà tipiche dicampioni estesi e non ci fornisce quindi informazioni peculiari ri-



Fig.3 - Andamento con la temperatura del campo crítico superficiale \mathbb{N}_{C5} per un film di Pb di spessore d = 3600 Å.



Fig. 4 – Andamento del campo cr^o ico H_{ci} in funzione della temperatura per un film di Pb di spessore d=3600 Å.

guardo al comportamento dei film veri e propri.

Per quanto riguarda invece i campioni di spessore d = 4500 Å e d = 3600 Å i campi critici misurati cominciano a differire sensibilmente da quelli del campione esteso ed il termine correttivo è dell'ordine del 10%.

Notiamo incltre che il valore di α , ottenuto nei due casi, rispettivamente 1.03 e 1.05, è in buon accordo con i valori previsti da Ginzburg⁽³⁾.

2 - Regione intermedia d $\gtrsim \xi$ (t)

Proseguendo nel nostro studio, abbiamo analizzato le proprietà di campioni di spessore via via decrescente in modo da raggiungere un intervallo di valori per i quali la condizione d >> ξ (t) non è più valida. Gli spessori dei campioni su cui abbiamo effettuato le misure sono i seguenti: 3000 Å, 2800 Å, 2400 Å, 2200 Å e 1800 Å.

Questi campioni si trovano in un intervallo di spessori che dal punto di vista teorico presenta le maggiori difficoltà in relazione alla dipendenza della temperatura dei campi critici di volume H_{cF} . Pur tuttavia noi abbiamo messo in evidenza che si continua ad avere una buona interpolazione dei risultati sperimentali, per temperature non troppo vicino T_c , facendo ancora uso della espressione (1), valida nel limite d >> ξ (t), a condizione che si considerino valori del parametro α più grandi di quelli previsti da Ginzburg. Vogliamo puntualizzare che la validità della relazione (1) è di tipo empirico nell'intervallo di spessori considerato, ed il suo uso è giustificato a posteriori, visto il buon accordo con i dati sperimentali.

I valori di λ (0, d), α e t_{id_{c3}}, ottenuti con i metodi precedentemente descritti sono riportati nella tabella riassuntiva (2) del paragrafo successivo.

In tale tabella sono riportati anche i valori critici del parametro di G-L. Infatti ricordando che il valore del parametro k caratterizza lo stato superconduttivo ad ogni temperatura, è evidente che per $t = t_{H_{c_3}}$ il parametro l'assumerà un valore critico i del di sopra del quale la superconduttività superficiale è presente.

Il valore sperimentale è stato ricavato dalla misura di H_{c_3} mediante la relazione:

SPER.
$$k_{H_{c_3}} = \frac{H_{c_3}}{1925(1 - t^2)}$$
 (2)

e confrontato con il valore teorico ricavabile dalla:

TEOR.

$$H_{c_3} = 0.42 \left(1 + \alpha \frac{\lambda(0, d)}{d}\right)$$
 (3)

1 I

3 - Limite
$$d < \sqrt{5} \lambda(t)$$

Infine abbiamo effettuato due misure su campioni di spessore

d = 1000 Å e d = 600 Å che soddisfano la condizione d $< \sqrt{5} \lambda$ (t) per qualunque t. In questo caso la teoria G-L , prevede che in tutto l'intervallo di temperatura si abbia soltanto una transizione di fase del 2° ordine nel volume del campione. Per questi spessori, che risultano paragonabili con la lunghezza di coerenza ξ_0 , non è infatti più possibile distinguere le proprietà superficiali da quelle di volume e pertanto non è più definibile un campo critico superficiale.

Le caratteristiche della transizione di fase sono chiaramente osservabili nella famiglia di curve presentata in figura 5 per il cam pione di spessore d = 1000 Å; mentre in figura 6 riportiamo l'andamento dei campi critici H_{c_F} con la temperatura, confrontato con la relazione:

$$H_{c_{F}}(t) = \sqrt{24} H_{c}(0) \frac{\lambda(0,d)}{d} \left[\frac{1-t^{2}}{1+t^{2}} \right]^{1/2}$$
(4)

Il confronto è stato fatto usando come parametro λ (0, d)/d. I valori ottenuti per λ (0, d) nei due casi sono contenuti nella tabella(2).

4 - Quadro riassuntivo dei risultati ottenuti

Per consentire una analisi comparativa dei risultati è presentato in figura 7 l'andamento dei campi critici H_{c_F} in funzione di t² per la maggior parte dei campioni considerati. Le curve teoriche riportate si riferiscono alle espressioni precedentemente discusse



Fig.5 – Picchi di superconduttive a registrati a varie temperature, per un film di Po depositato su rame di spessore d = 1000 Å. Le curve sono state normalizzate.



Fig.6 – Andamento con la temperatura del campo critico H_{cp} per un tilm di Pb depositato su rate e di spessore de 1000 Å.

<u>بر</u> در

| d (Å) | $\alpha \lambda_{o}/d$ | λ_(Å) | α | (Sper.) t _{HC3} | (Teor.) Ca | (Sper.) K _{H_{C3}} | (Teor.) K _{H_{C 3}} |
|-------|----------------------------|-------|-------|-----------------------------|---------------|--|---|
| 15000 | | 445 | | 0,829 | 0, 835 | 0, 42 | 0, 42 |
| 7000 | 0,017 | 442 | | 0.754 | 0, 754 | 0, 45 | 0, 45 |
| 6000 | 0, 0.30 | 445 | | 0, 745 | 0, 747 | 0. 46 | 0, 44 |
| 4500 | 0, 103 | 450 | 1.03 | 0. 7 30 | 0.734 | 0, 40 | 0. 47 |
| 3600 | 0, 131 | 447 | 1.05 | 0, 695 | 0, 697 | 0, 49 | 0. 4H |
| 3000 | 0. 193 | 442 | 1.31 | 0,613 | 0 618 | 0. 50 | 0, 50 |
| 2800 | 0.209 | 442 | 1, 33 | 0, 606 | 0. 616 | 0, 52 | 0. 51 |
| 2400 | 0, 281 | 46 3 | 1.46 | 0,618 | 0.634 | 0. 55 | 0.55 |
| 2200 | 0. 317 | 472 | 1, 48 | 0, 644 | 0. 646 | 0.58 | 0. 57 |
| 1800 | 0. 452 | 485 | 1.68 | 0. 545 | 0. 576 | 0, 63 | • 0, 62 |
| 1000 |), d 0, 528 | 52 H | | | | | |
| 600 | λ _o /d 0.917 | 550 | | | | | |

Tabella 2

I.

•



Fig.7 - Variazioni del campo critico parallelo H_{CF} con il quadrato della temperatura ridotta per film di Pb di vario spessore.

per i diversi intervalli di spessori.

Infine è allegata una tabella riassuntiva (2) che contiene tutte le informazioni ricavate nel corso di questo lavoro.

5 - Interpretazione e discussione dei risultati sperimentali

L'insieme dei risultati ottenuti costituisce un quadro fenomenologico complessivo che porta a numerose informazioni sulla risposta elettromagnetica di film superconduttivi in presenza di un campo magnetico nella regi ne delle microc: de. Per ragioni di semplicità noi discuteremo separatamente i vari risultati ottenuti che possono essere raggruppati nei seguenti punti significativi:

a) andamento dei campi critici con la temperatura;

b) analisi della forma di riga;

c) and amento della temperatura critica $t_{H_{c_3}}$ in funzione dello spessore del film.

a) Andamento dei campi critici con la temperatura.

Per quanto concerne i campi critici, presenta un interesse notevole lo studio della dipendenza dalla temperatura del campo critico di volume del film H_{c_F} e del campo critico superficiale H_{c_3} . I risultati ottenuti per H_{c_3} nell'intervallo di esistenza della superconduttività superficiale che, come preciseremo successivamente, è fortemente diperdente dallo spessore, sono in buon accordo con la espressione teorica data da S. James e de Gennes.

L'interpolazione dei dati sperimentali (S. E inferiore a 10 gauss), usando come parametro λ (0, d), permette inoltre una buona valutazione di quest'ultima grandezza, e ne consente quindi lo studio della dipendenza dallo spessore.

I risultati ottenuti con questo metodo nell'intervallo di spessori 1800 Å \div 7000 Å, sono presentati in figura 8. Per completezza nella figura stessa sono presentati anche i valori di λ (0,d) relativi ai campioni di spessore d = 1000 Å e d = 600 Å, che sono stati ottenuti valendosi della espressione (4) per H_{c_F}. La curva a tratto continuo è stata tracciata per visualizzare meglio l'andamento.

L'andamento osservato per λ (0, d), che risulta praticamente costante fino a spessori dell'ordine di 3000 Å e che aumenta per spessori inferiori, è in accordo qualitativo con i risultati ottenuti da diversi autori^(4,5,6) ed in particolare con i dati riportati da Miller⁽⁷⁾ relativi all'andamento di ^(0, d) al variare del libero cammino medio per diversi valori del rapporto ξ_0 / λ_L (0). Più precisamente Miller fa vedere come la lunghezza di penetrazione aumenti al diminuire del cammino libero medio e quindi, poiché questo ultimo, nel caso di film sottili, può essere considerato dello stesso ordine di grandezza dello spessore, è ragionevole attendersi che λ (0, d) aumenti al diminuire dello spessore stesso.

Per quanto concerne l'analisi dei dati relativi ai campi critici H_{c_F} abbiamo osservato un buon accordo con le relazioni valide nell'ambito della teoria G-L, nei limiti in cui d >> ξ (t) e in cui $d < \sqrt{5} \lambda$ (t).

I campioni analizzati che sicuramente rientrano nel primo di



Fig.8 - Andamento della lunghezza di penetrazione estrapolata λ (0, d) in funzione dello spessore del film. La curva continua è puramente indicativa.

_

_

questi limiti sono i seguenti: 7000 Å, 6000 Å, 4500 Å, 3600 Å. Come già detto nell'i presentazione dei dati, il comportamento dei primi due campioni non differisce però sensibilmente da quello di superconduttori estesi per ciò che riguarda i campi critici. Gli ultimi due invece presentano il comportamento tipico di film spessi e sono caratterizzati da valori del parametro α (Tab. 1) molto prossimi ad uno, in ottimo accordo con quanto previsto da Ginzburg. Anche nel limite di film sottili l'accordo con la teoria è soddisfacente per entrambi i campioni analizzati (600 Å e 1000 Å).

Possiamo pertanto concludere che la teoria G-L negli intervalli di spessori in cui ha portato in maniera semplice, in virtù delle ipotesi iniziali, a delle espressioni esplicite per i campi critici, è in pieno accordo con i nostri dati sperimentali.

Nel corso di questo lavoro abbiamo eseguito delle misure, come già presentato, su campioni in un intervallo di spessori confrontabili con la lunghezza caratteristica ξ (3000 Å + 1800 Å) del superconduttore. In questa regione di spessori, la soluzione delle equazioni di C-L presenta delle grosse difficoltà analitiche e non abbiamo potuto quindi confrontare i nostri risultati con alcuna espressione teorica.

Desideriamo puntualizzare che questa difficoltà è legata ad una proprietà peculiare di quei superconduttori, per i quali la lunghezza di coerenza è confrontabile con le dimensioni caratteristiche di un film.

Questo comporta, da un punto di vista teorico, che il gradiente della $\Psi(x)$ non possa più essere trascurato nell'espressione dell'energia libera del campione. Pur tuttavia, ferme restando queste difficoltà teoriche, abbiamo ottenuto una buona interpolazione dei dati sperimentali ottenuti su campioni appartenenti alla regione intermedia, valendoci dell'espressione non canonica (1) valida nel limite di film spessi, ma con un parametro α variabile tra 1.31 e 1.78.

Tali valori di α possono essere qualitativamente giustificati, ammettendo che i termini del gradiente della Ψ (x), non più trascurabili, contribuiscono all'espressione dell'energia libera dello stato superconduttivo, innalzando i campi critici relativi come osservato sperimentalmente.

Un comportamento simile a quello che si è osservato nei campi critici al variare di d, può essere messo in evidenza, per campioni di spessore opportuno, al variare della temperatura. Infatti variando t è possibile agire sulle lunghezze caratteristiche λ (t) e ξ (t) del superconduttore e di conseguenza passare con gradualità da una condizione di film sottile ad una di film spesso.

Ciò può essere notato sul grafico di figura 7 per i campioni di spessore compreso tra 1800 Å e 3600 Å per i quali è possibile distinguere nettamente due regioni: la prima vicino T_c viene infatti interpolata con l'espressione (4), in quanto $d < \sqrt{5} \gtrsim (t)$, mentre la regione a basse temperature viene invece confrontata con l'altra espressione (1) con gli opportuni valori del parametro q.

Infine in figura 9 è presentato l'andamento di H_{c_F} (t)/ H_c (t) in funzione del rapporto d/ λ (t) costruito con la maggior parte dei dati sperimentali.

Per ognuno dei nostri campioni abbiamo infatti ricavato i valori del rapporto d/ λ (t) sfruttando il valore di λ (0, d) ottenuto spe-



Fig.9 - Andamento di $H_{cF}(t)/H_{c}(t)$ in funzione del rapporto d'N(t).

rimentalmente e valendoci della legge di variazione della lunghezza di penetrazione con la temperatura $\lambda(t) = \lambda(0, d)/(1 - t^4)^{1/2}$.

L'insieme dei dati relativi ai campioni considerati si distribuisce in modo significativo su un'ampia zona della variabile $d/\lambda(t)$.

Anche altri autori^(8,9) si sono serviti di questo tipo di presentazione globale dei dati, che a nostro avviso, è molto significativa. Infatti, mentre precedentemente, per distinguere il comportamento inagnetico dei film abbiamo trattato separatamente le dipendenze dalla temperatura e dallo spessore, nella figura 9 si considerano queste ultime in maniera simultanea, e di conseguenza si ottiene una rappresentazione più sintetica. L'osservazione del grafico di figura 9 consente, ancora una volta, di individuare i due comportamenti tipici, precedentemente discussi, $(d >> \xi (t), d < \sqrt{5} \lambda (t))$.

Ci si è quindi presentato il problema di trevare una espressione funzionale di tipo semiempirico, che interpolasse i nostri dati su tutto l'intervallo e che tenesse conto degli andamenti teorici noti nei due limiti.

Ciò è stato ottenuto mediante una combinazione non lineare delle due espressioni asintotiche per i campi critici (4) (1):

$$\frac{H_{c_{F}}(t)}{H_{c}(t)} = \left[1 - F\left(\frac{d}{\lambda(t)}\right)\right]\sqrt{24} \frac{\lambda(t)}{d} + F\left(\frac{d}{\lambda(t)}\right) \cdot \left(1 + \alpha \frac{\lambda(t)}{d}\right)$$
(5)

dove

$$F\left(\frac{d}{\lambda(t)}\right) = \left[1 + \exp\left(-\frac{d/\lambda(t) - \beta}{\gamma}\right)\right]^{-1}$$

dove $\beta = 0.7 \text{ e } \gamma = 3.3$,

I coefficienti β e γ sono stati ottenuti come parametri, interpolando i dati con un metodo di minimi quadrati non lineari. La curva tratteggiata di figura 9 rappresenta infatti la migliore interpolazione con E.S. 0.07.

b) Analisi della forma di riga.

Ci proponiamo ora di analizzare l'evoluzione al variare dello spessore e della temperatura delle forme di riga sperimentalmente osservate in funzione del campo magnetico.

Cominciamo con l'osservare la serie di curve di figura 5^(*) relativa al campione di spessore d = 15.000 Å. Si può notare che per temperature decrescenti da t = 0.958 a t = $t_{H_{c3}}$ = 0.829, le curve risultano molto strette e simmetriche e presentano una larghezza a metà altezza dell'ordine di pochi gauss. Un andamento di questo tipo è in accordo con il fatto che la transizione di fase ad H , come previsto dalla teoria, risulta del primo ordine, in quanto il parametro Ψ , e di conseguenza la gap, va a zero in modo discontinuo in corrispondenza del campo critico.

Per temperature inferiori a $t_{H_{C_3}}$ coesistono due transizioni di fase di ordine diverso; accanto alla transizione ad H_{C_F} , che risulta sempre visibile, si manifesta un'altra transizione ad H_{C_3} con peso via via crescente al diminuire della temperatura. Possiamo osservare che per valcei di t, per i quali la presenza della superconduttività superficiale ha un peso rilevante nella struttura della riga, (che come abbiamo visto è rivela¹ le dalla pedita di simmetria nella parte destra della riga stessa) la transizione si presenta con un allargamento tipico di molti ordini di grandezza più elevato

^(*) Vedere rapporto Laboratori di Fisica dell'Ist. Sup. Sanità ISS 72/5.

rispetto a quello caratteristico della transizione ad ${\rm H}_{\rm c_F}$.

Come sappiamo, la transizione di fase ad H_{c_3} è del 2° ordine e quindi siamo in grado di continuare la nostra analisi discriminando da un punto di vista sperimentale l'ordine di una transizione di fase.

Per quanto concerne gli altri campioni, questi possono essere suddivisi dal punto di vista della forma di riga, in due gruppi; nel primo, inseriamo quei campioni che soddisfano la condizione $d < \sqrt{5} \lambda$ (t) in tutto l'intervallo di temperatura (600 Å, 1000 Å), nel secondo tutti gli altri che presentano un comportamento più vario.

I due comportamenti caratteristici sono stati presentati nelle figure 1 e 5.

Per quanto riguarda il film sottile la transizione di fase è tipicamente del 2° ordine in tutto l'intervallo di temperatura.

Si può notare comunque che la forma di riga si altera al diminuire della temperatura, passando da una distribuzione asimmetrica rispetto al massimo, ad una più simmetrica e più larga. Un tentativo di interpretazione può essere fatto in termini del comportamento della gap nell'intorno del campo critico.

Si vedano a questo proposito i risultati di Douglass⁽⁹⁾ sull'Alluminio, figura 10, che mostrano come per un campione nel limite di film sottile d = 860 Å, la gap vada a zero con pendenze decrescenti al diminuire di t.

Vogliamo puntualizzare che il tipo di curve da noi osservato è fortemente dipendente dal fatto che la tecnica di rivelazione fa uso di fotoni a microonde che possono indurre transizioni attraver-



Fig. 10 - Andamento della gap in funzione del campo magnetico a varie temperature, per due film di Al di diverso spessore. R. Maservey, D.H. Douglass⁽⁹⁾.

so la gap anche prima che il campo magnetico annulli la gap stessa, sebbene il massimo dell'assorbimento avvenga sempre per H = H.

Questa considerazione diventa particolarmente importante per transizioni di fase del 2° ordine, in quanto l'intervallo di campi magnetici in cui l'energia dei fotoni a microonde è dello stesso ordine di grandezza della gap è significativamente maggiore rispetto ad una transizione del l° ordine in cui la gap stessa va a zero in un intervallo molto più ristretto di campi.

Le osservazioni fin qui fatte ci consentono allora di associare la forma della riga all'ordine della transizione di fase relativa; infatti transizioni di fase del l^o ordine mostreranno generalmente delle larghezze a metà altezza molto minori rispetto a quelle del 2° ordine.

Alla luce di quest'ultima affermazione è possibile caratterizzare immediatamente quanto si può osservare nella figura 1 che rappresenta il comportamento medio caratteristico dei campioni con spessore compreso tra d = 7000 Å e d = 1800 Å. Infatti per temperature prossime a T_c la transizione ad H_{c_F} è del 2° ordine $(d < \sqrt{5} \lambda (t))$. Questo è anche confermato dal fatto che i campi critici stessi, crescono con la temperatura con la legge (4), tipica dei film sottili (si veda la figura 7); gli intervalli di temperatura per i quali la condizione $d < \sqrt{5} \lambda (t)$ è rispettata sono ovviamente maggiori al diminuire dello spessore.

Abbassando ulteriormente la temperatura, prima della compa<u>r</u> sa della superconduttività superficiale, la forma della riga assume l'aspetto tipico di una transizione di fase del l'ordine come ci si deve aspettare. Infine al di sotto di $t_{H_{c_3}}$ la forma di riga è tipica di una situazione fisica di coesistenza di due transizioni di fase di ordine diverso.

A quest'ultimo proposito vogliamo far notare che, mentre nel caso del campione di spessore d = 15.000 Å, la separazione delle due transizioni è piuttosto netta, al diminuire dello spessore questo non è più verificato.

Al momento attuale non siamo in grado di giustificare tale com portamento, in quanto nessuna delle variazioni osservate nelle proprietà dei film, al diminuire dello spessore (allargamento dei picchi di superconduttività, si veda la figura 11, diminuzione delle differenze H' - H_{c_F} , variazioni dell'andamento della gap in funzione del campo magnetico) sembra poter spiegare da sola quanto osservato. Probabilmente la situazione sperimentale è più complessa e determinata dal concorso di fattori le cui connessioni attualmente ci sfuggono.

Infine in figura 11 presentiamo l'andamento delle larghezze a metà altezza dei nostri campioni, ad una data temperatura, in funzione dello spessore. La temperatura è stata scelta in maniera che effetti superficiali non influenzassero la forma delle curve. L'andamento è interpretabile ancora una volta in termini di comportamento della gap, facendo riferimento alla figura 10.

I risultati mostrano un passaggio graduale da una transizione di fase del primo ordine ad una del secondo.

c) Andamento della temperatura critica $t_{H_{c_3}}$ in funzione dello spessore del film.

Nella presentazione dei risultati è stato descritto un criterio



_

-

_

Fig. 11 - Andamento delle larghezze a metà altezza dei picchi di superconduttività, registrati ad una data temperatura, in funzione dello spessore del film. La curva a tratto continuo è puramente indicativa.

che permette di stabilire, per un campione di dato spessore, quale sia la temperatura a cui è possibile rivelare sperimentalmente la presenza di uno strato superficiale superconduttivo. Più precisamente, è stata definita una temperatura $t_{H_{c_3}}$ in corrispondenza della quale H' - H_{cr} mostra un brusco incremento.

Il confronto tra i risultati ottenuti per i campioni di spessore d = 15.000 Å e d = 3600 Å presentati in dettaglio mostra che la temperatura critica $t_{H_{c_3}}$ è fortemente influenzata dallo spessore del film.

Lo studio completo della dipendenza di $t_{H_{c_3}}$ dallo spessore è presentato in figura 12 b, nella parte superiore della quale (12 a) sono riportati i valori di λ (0, d) di cui ci varremo per la interpre-tazione dell'andamento osservato.

Nella regione di spessori compresa tra i 7000 Å ed i 3000 Å in cui λ (0, d) è costante, risultano determinanti per la caratterizzazione di t_{Hc3} gli andamenti con la temperatura dei campi critici $H_{c_{\rm F}} \in H_{c_3}$. Infatti al diminuire dello spessore l'incremento dei campi critici $H_{c_{\rm F}}$, non è compensato da un corrispondente aumento in H_{c_3} in quanto λ (0, d) è costante, e di conseguenza $t_{H_{c_3}}$ si abbassa. Diminuendo ulteriormente lo spessore, λ (0, d) comincia a crescere ed in corrispondenza $t_{H_{c_3}}$ risalirà a causa del diverso peso (non compensato dal piccolo incremento di α) che la lunghezza di penetrazione ha nelle espressioni di $H_{c_{\rm F}}$ ed H_{c_3} . Infine la successiva diminuizione in $t_{H_{c_3}}$ può essere compresa considerando che i campi di volume, al di sotto di spessori dell'ordine di 2000 Å si incrementano fortemente.

La curva a tratto continuo di figura 12 b è ricavata dalla espres-



Fig. 12: a- Lunghezza di penetrazione $\lambda(0, d)$ in funzione dello spessore del film.



Fig.12b - Andamento della temperatura critica t_{Hc3} in funzione dello spessore del tilm.

sione

$$t_{H_{c_3}}^6 + (1 - 2a) t_{H_{c_3}}^6 + (a^2 + b^2 - 1) t_{H_{c_3}}^2 + b^2 - (a - 1)^2 = 0$$
 (6)

dove

$$a = \frac{2 \pi \sqrt{2} H_{c_0} \lambda^2 (0)}{0.42 \phi_0} \qquad e \qquad b = \alpha \frac{\lambda (0)}{d}$$

nella quale si è fatto uso dei parametri λ (0, d) e $\alpha \lambda$ (0, d)/d ricavati sperimentalmente dalle interpolazioni dei campi critici relativi ai singoli campioni.

Vogliamo mettere in evidenza che il buon accordo osservato è piuttosto confortante in quanto è stato ottenuto mediante l'uso e l'elaborazione di dati sperimentali completamente indipendenti. Infine si può osservare che i nostri punti sperimentali sono sistematicamente al di sotto della curva a tratto continuo. Questo si può spiegare tenendo presente che, mentre l'espressione teorica (6) è stata ricavata per uguaglianza tra H_{cF} ed H_{c3} , la rivelazione sperimentale è possibile soltanto se $H_{c3} > H_{cF}$.

Gli autori desiderano ringraziare il dr. E. Tabet per alcune stimolanti discussioni ed i Sigg. M. Flamini e A. Rosati per l'appassionante assistenza tecnica durante le misure e per la preparazione dei campioni.

Bibliografia

- 1) E.Di Crescenzo, P.L.Indovina, S.Onori, A.Rogani Risposta elettromagnetica di film superconduttivi di Pb in funzione del campo magnetico nella regione delle microonde I, Rapporti dei Laboratori di Fisica dell'Ist. Sup. Sanità, ISS 72/5 (1972)
- 2) K.L.Chopra Thin film Phenomena, p.529, Mc Graw-Hill, New York (1969)
- 3) V.L.Ginzburg Soviet Phys. J.E.T.P., 7, 78 (1958)
- 4) E. Kratzing, K. Walther e W. Schilz Phys. Letters 30A, 41i (1969)
- 5) W.B.Ittner, III Physics of thin films 1, 233 (1963)
- 6) D.H.Douglass, Jr. Phys. Rev. <u>124</u>, 735 (1961)
- 7) P. Miller Phys. Rev. 113, 1209 (1959)
- 8) M.V.Ricci, M. Sacchetti Alta frequenza, 39, n.6, p.511 (1970)
- 9) R. Meservey e D. H. Douglass, Jr. Phys. Rev. 135, A24 (1964)

Riassunto - Risposta elettromagnetica di film superconduttivi di Pb in funzione del campo magnetico nella regione delle microonde. Parte II.

Questo fascicolo è il secondo di due rapporti sullo studio delle proprietà magnetiche di film superconduttivi. I risultati ottenuti si inquadrano nella teoria di Ginzburg-Landau e possono essere così riassunti: a) misure della dipendenza dei campi critici di volume H_{cF} al variare dello spessore e determinazione di una espressione semiempirica valida per ogni valore del rapporto d/ λ (t); b) dipendenza della lunghezza di penetrazione del campo magnetico dallo spessore; c) studio dell'ordine della transizione di fase in funzione del campo magnetico per vari spessori e temperature; d) determinazione della temperatura a cui si manifesta la superconduttività superficiale e relativo andamento al variare dello spessore.

Abstract - Magnetic field dependence of the microwave properties of Pb superconductive films. Part II.

This paper is the second of two reports concerning magnetic properties of superconducting films. Our results, which are in good agreement with the Ginzburg-Landau theory, will be summarized as follows; a) dependence of the critical magnetic field H_{cF} on the sample thickness; general semiempirical expression valid for any d/λ (t); b) variation of the penetration depth with the film thickness; c) study of the order of the phase-transition as a function of the magnetic field at various temperatures and sample thickness; d) variation of $t_{H_{c3}}$ with the film thickness.

I "Rapporti dei Laboratori di Fisica dell'Istituto Superior - di Sanità" pubblicano:

notizie su ricerche in corso, i cui risultati anche parziali si abbia interesse a rendere noti immediatamente, senza attendere la loro pubblicazione regolare su riviste specializzate;

resoconti su ricerche eseguite, più estesi e dettagliati di quanto non si possa fare su riviste specializzate;

contributi di carattere tecnico, risultati di calcoli, grafici, tabelle numeriche, ecc., che, per quanto utilissimi al ricercatore, non si pos sono per ragioni di spazio o di costo o per ragioni tecniche pubblicare a stampa;

corsi di lezioni e seminari, resoconti di attività e simili:

discussioni di problemi di fisica applicata alla Sanità Pubblica, com particolare riguardo ai controlli di Stato, e relativa documentazione.

Il materiale pubblicato si riferisce esclusivamente ad attività svoi te nei Laboratori di Fisica: la eventuale collaborazione di altri Labora tori o Istituzioni è in ogni caso chiaramente indicata in nota al titolo, nella prima pagina del testo.

Ogni rapporto può essere citato facendo riferimento alla sigla stam pata in alta a destra nella prima pagina di copertina. Per esempio: ISS 61/16 sta per "Ricerche in corso al 31 marzo 1961".

La data stampata in copertina a pie' della prima pagina è quella della consegna alla tipografia del testo pronto per la stampa.

Ogni lavoro, prima della pubblicazione, è di solito oggetto di discussione in iminari o riunioni di laboratorio ed il testo scritto vicne preventivamente approvato aal Capo dei Laboratori di Fisica.

La riproduzione parziale o totale dei "Rapporti ISS" deve essere preventivamente autorizzata dal Capo dei Laboratori di Fisica.

A cura del Servizio Documentazione dei Laboratori di Fisica.

