Márcio de Sousa Bolzan

Interferência quântica na corrente crítica macroscópica de cerâmicas policristalinas com uma intrínseca solução sólida de duas fases supercondutoras

> Vitória 2015

Interferência quântica na corrente crítica macroscópica de cerâmicas policristalinas com uma intrínseca solução sólida de duas fases supercondutoras

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal do Espírito Santo, para a obtenção de Título de Doutor em Física, na Área de Física Aplicada.

Orientador: Prof. Dr. Marcos Tadeu D'Azeredo Orlando

Co-orientador: Prof. Dr. Carlos Augusto Cardoso Passos

Vitória 2015 Bolzan, Márcio de Sousa

Interferência quântica na corrente crítica macroscópica de cerâmicas policristalinas com uma intrínseca solução sólida de duas fases supercondutoras

126 páginas

Tese (Doutorado) - Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal do Espírito Santo. Departamento de Física.

- 1. Supercondutividade
- 2. Supercondutores cerâmicos
- 3. Efeito Josephson
- 4. Corrente crítica
- 5. Condutividade elétrica

I.Universidade Federal do Espírito Santo. Programa de Pós-Graduação em Física. Departamento de Física.

Comissão Julgadora:

Prof. Dr. Eduardo Granado Monteiro da Silva IFGW/UNICAMP

Prof. Dr. Antonio Eduardo Martinelli UFRN

Prof. Dr. Carlos Augusto Cardoso Passos UFES - co-orientador

Prof. Dr. José Alexandre Nogueira UFES

Prof. Dr. Marcos Tadeu D'Azeredo Orlando UFES - orientador

Aos meus filhos, à minha esposa, à minha mãe e ao meu pai. A caminhada foi difícil, mas vocês sempre me motivaram a continuar. A melhor coisa que você pode fazer por alguém é inspirá-la. Bob Dylan

O único lugar onde o sucesso vem antes do trabalho é no dicionário. $\mbox{Albert Einstein}$

Agradecimentos

Agradeço primeiramente à Deus, pois me conduziu por caminhos tortuosos, muitas vezes me carregou nos braços, mesmo quando eu duvidei. Obrigado meu Deus, pois fez em mim maravilhas e permitiu que grandes benções me atingissem.

Agradeço à minha esposa, Juliana, que sempre esteve ao meu lado, pelos anos que ela tem dedicado à nossa família. Obrigado Juliana, por nunca desistir de mim, por se contentar com tão pouco. Prometo que vamos tirar férias pela primeira vez!

Agradeço aos meus filhos, pois são minhas maiores fontes de energia e motivação. Meus grandes garotos, me enchem e me encheram de orgulho sempre. Que Deus possa iluminar os passos de vocês, a fim de que se tornem homens saudáveis e fiéis.

Agradeço aos meu Pais. Com muita dificuldade, pude estudar em boas escolas e conseguir um lugar na UFES. Com eles aprendi valores que jamais esquecerei, me mostraram o que fazer e o que não fazer com muita sabedoria.

Agradeço à UFES, na figura do meu Orientador, Prof. Marcos Tadeu. Estudei de graça durante esses 10 anos de formação, devo muito à UFES. Obrigado Prof. Marcos Tadeu pelos 5 anos de orientação, pude aprender muito com o Sr., academicamente, profissionalmente, politicamente e socialmente. Muito obrigado.

Agradeço ao Prof. Carlos Augusto pela co-orientação, pelo apoio e pela disponibilidade.

Agradeço aos colegas da UFES, aos servidores e todos que contribuíram direta ou indiretamente para com este trabalho.

Agradeço à CAPES pelo suporte financeiro.

Resumo

O espalhamento da corrente supercondutora na passagem entre grãos numa cerâmica policristalina tem sido estudado por vários pesquisadores, em especial nestes últimos 20 anos. Neste trabalho utilizamos o conhecimento da estrutura entre os grãos encontrada nas cerâmicas supercondutoras a base de mercúrio, cuidadosamente produzidas na UFES, associado a uma modelagem de interferência quântica macroscópica para descrever o comportamento da corrente crítica, quando a amostra é submetida à presença de campos magnéticos. Associando a energia de aprisionamento dos vórtices (pinning) a uma modelagem mais detalhada do contorno de grão conseguimos descrever teoricamente o comportamento observado da corrente crítica. O modelo proposto adiciona uma nova visão sobre a correlação entre a corrente crítica e a descrição do contorno de grão, evidenciando o papel de parâmetros importantes oriundos da distribuição de tamanhos de junções entre grãos e do potencial de aprisionamento de vórtices na descrição correta dos valores medidos da corrente crítica em função do campo aplicado. Portanto, concluímos neste trabalho a proposta de um modelo de junção $S_1S2IS_2S_1$ associado a um modelagem estatística que descreve com boa qualidade de previsão o comportamento da corrente crítica em amostras cerâmicas policristalinas a base de mercurio, quando a amostra é submetida a um campo magnético externo.

Palavras-chave: Junções Josephson, High-Tc, Cerâmicas Policristalinas

Abstract

The scattering of the superconducting current in the passage between grains in a polycrystalline ceramic has been studied by several researchers especially in recent 20 years. In this study we used the knowledge of the structure between the grains found in the superconducting ceramics based on mercury carefully produced in UFES, associated with a macroscopic quantum interference modeling to very precisely describe the behavior of the critical current when the sample is submitted at presence of magnetic fields. Associating the pinning energy of the vortex, it is possible to model with more detail the grain boundary, and find a better description of the behavior of the critical current measured experimentally. The proposed model here adds new insight into the correlation between the critical current and the description of the grain boundary, highlighting the role of parameters relevant as size distribution of the junctions between grains and the pinning potential of vortex in the correct description of the measured values of the critical current as a function of the applied field. Therefore, we conclude that this paper proposing a model that describes with good quality the critical current behavior circulating in polycrystalline ceramic samples based on mercury, when the sample is subjected to an external magnetic field.

Keywords: Josephson Junction, High-Tc, Polycrystalline Ceramics

Lista de Figuras

1.1	Trajétoria do elétron segundo o Modelo de Drude	2
1.2	Comportamentos esperados para resistividade com base no modelo	
	de Drude	4
1.3	Resistividade versus temperatura para o Mercúrio	5
1.4	Cronologia das descobertas de novos supercondutores	11
2.1	Gráfico ρ versus T do supercondutor HgBaCaCuO $\ldots \ldots \ldots$	18
2.2	Esquema de experimento para análise de correntes persistentes em	
	anéis supercondutores	19
2.3	Efeito Meissner-Ochsenfeld	21
3.1	Superposição das funções de onda do superelétrons em supercon-	
	dutores diferentes numa junção.	39
3.2	Esquema representativo de um junção retangular	45
3.3	Esquema 2D de uma junção Josephson retangular	46
3.4	$I_0(B)$ teórico para uma junção retangular	52
4.1	Amostra instalada no suporte de safira denominado porta-amostra,	
	unidade de medida centímetro	56

4.2	Aparato experimental para medidas de resistividade elétrica e cor-	
	rente crítica	57
4.3	Esquema simplificado do equipamento	58
5.1	Diagramas de Voronoi	62
5.2	$J_c(H)$ 121.5K para $n = 4 e n = 30 \dots$	65
6.1	Representação esquemática das correntes de blindagem intergranular	67
6.2	Gráfico da parte real da susceptibilidade AC versus $\mu_0 H$ numa	
	amostra supercondutora em pastilha da cerâmica Hg, Re-1223 a	
	$10\%\ \mathrm{PO}_2\ \mathrm{em}\ 77\ \mathrm{K}$	68
6.3	Simulação do comportamento de $\mathbf{J}_c(\mathbf{H})$ numa junção retangular	
	com $t_b(0,77K) = 372$ nm	70
6.4	Simulação do comportamento de $\mathbf{J}_c(\mathbf{H})$ numa junção retangular	
	com $t_b(0,77K) = 372$ nm para obter os tamanhos máximos e mí-	
	nimos das junções da amostra Hg,Re-1223 através do diagrama de	
	$\chi'(\mathrm{H})$	71
6.5	O gráfico da derivada de primeira ordem de $\chi'({ m H})$	73
7.1	Modelagem da curva experimental de $J_c(H)$ a temperatura de	
	121.5 K	77
7.2	Diagrama de $\partial \chi'(H)/\partial H$ indicando H^b_{c1}	80
8.1	Desenho esquemático da penetração do campo magnético aplicado	
	à junção e grão	84
8.2	Modelagem de $J_c(H)$ com o modelo corrigido	86

9.1	Medidas de resistividade elétrica AC com diferentes campos mag-	
	néticos aplicados. A linha pontilhada representa a região onde foi	
	feito o ajuste de Arrhenius na amostra otimamente dopada. Na	
	legenda é mostrada quais campos foram usados. A linha sólida	
	representa o ajuste linear.	88
9.2	A energia de <i>Pinning</i> como uma função do campo magnético apli-	
	cado para amostras de Hg,Re-1223 com diferentes concentrações	
	de oxigênio.	90
9.3	A densidade de corrente crítica dependente de $t = T/T_c^*$ para	
	amostras Hg,Re-1223 com diferentes teores de oxigênio. Estas me-	
	didas foram realizadas sem campo magnético aplicado.	92
9.4	Densidade de corrente crítica normalizada $(\mathbf{J}_c/\mathbf{J}_c(0))$ como uma	
	função de temperatura reduzida $t = T/T_c^*$. A linha do traço re-	
	presenta o ajuste para a teoria Ambegaokar-Baratoff	93
10.1	Desenho esquemático de dois tipos de junção, o SIS e o proposto	
	$S_1S_2IS_2S_1$ para os compostos policristalinos com uma mistura de	
	duas fases supercondutores.	98
10.2	Modelagem de $J_c(H)$ para a amostra A, com $m=5,~\eta=0.42~ imes$	
	$10^{-6} e t_B(0,121.5K) = 782 \text{ nm. Usou-se } \mu_0 H^*(121.5K) = 4.01 \text{ mT}$	
	e $n = 1.11$ para a modelagem com o modelo de junção $S_1 S_2 I S_2 S_1$.	99
10.3	Modelagem de $J_c(H)$ para a amostra B, com $m=7, \eta=0.3857 \times$	
	$10^{-6} e t_B(0,121.5K) = 782 \text{ nm. Usou-se } \mu_0 H^*(121.5K) = 4.4 \text{ mT}$	
	e $n = 0.75$ para a modelagem com o modelo de junção $S_1 S_2 I S_2 S_1$.	100

10.4 Modelagem de $J_c(H)$ para a amostra C, com $m=6,\,\eta=0.4\times 10^{-6}$

e $t_B(0,121.5K) = 782$ nm. Usou-se $\mu_0 H^*(121.5K) = 4.2$ mT e

n=0.83para a modelagem com o modelo de junção $S_1S_2IS_2S_1.$. 101

Lista de Tabelas

)1
)1
)4
)2
)2

Abreviações

- **UFES** Universidade Federal do Espírito Santo
- **CAPES** Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior
- ${\bf SIS}$ Supercondutor-Isolante-Supercondutor
- **SNS** Supercondutor-Normal-Supercondutor

 $Hg, Re-1223 - (Hg, Re)_1 Ba_2 Ca_2 Cu_3 O_{8+d}$

- \mathbf{AC} Alternating current
- ${\bf SEM}$ Scanning electron microscope
- BCS Bardeen-Cooper-Schrieffer Theory
- \mathbf{WL} Weak Links
- **SBS** Supercondutor-Barreira-Supercondutor
- **SC1** Supercondutor 1
- **SC2** Supercondutor 2
- **EDS** Energy dispersive spectroscopy

Produção intelectual 2011-2015

Capítulo de livro

Livro: Superconductors: materials, properties and applications
Editora: InTech
Cidade: Rijeka
Ano: 2012
Capítulo: 15
Título: A Description of the Transport Critical Current Behavior of Polycrystalline Superconductors Under the Applied Magnetic Field
http://dx.doi.org/10.5772/50429

Artigos aceitos/publicados em revistas com Qualis

Revista: Advanced Materials Research
Tipo de publicação: Artigo Original
Ano: 2014
Título: Effects of Oxygen Doping on the Transport Properties of Hg_{0.82}Re_{0.18}Ba₂Ca₂Cu₃O_{8+d}
Superconducting Polycrystals
Vol.: 975
Páginas: 95-100
http://dx.doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.975.95

Revista: Journal of Superconductivity and Novel Magnetism
Tipo de publicação: Letter
Ano: 2015
Título: Critical Current Model for Polycrystalline Compounds with an Intrinsic
Solid Solution of Two Mixed Superconductor Phases
Vol.: indisponível (ainda não informado)
Páginas: indisponível (ainda não informado)
http://dx.doi.org/10.1007/s10948-015-3042-5

Revista: Journal of Superconductivity and Novel Magnetism

Tipo de publicação: Original Research

Ano: 2015

Título: Performance of a polycrystalline SmBaCuO superconducting fault current limiter

Vol.: indisponível (ainda não informado)

Páginas: indisponível (ainda não informado)

http: //dx.doi.org/10.1007/s10948-015-3141-3

Sumário

1 Introdução		1		
	1.1	Condu	ıção em Metais	1
	1.2	Origei	m da Supercondutividade	5
	1.3	A busca por respostas		6
	1.4	Novos horizontes		8
	1.5	5 Possíveis aplicações de supercondutores		12
	1.6	Corrente crítica em amostras supercondutoras policristalinas de		
		alta T	<i>c</i> · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	14
2	Fenômeno quântico macroscópico		17	
	2.1	Propr	iedades básicas de supercondutores	17
		2.1.1	Resistividade Zero	17
		2.1.2	Efeito Meissner-Ochsenfeld	19
		2.1.3	Diamagnetismo perfeito	22
2.2 Um modelo quântico macroscópico		odelo quântico macroscópico	23	
		2.2.1	Fenômeno de coerência na supercondutividade	23
		2.2.2	Correntes quânticas macroscópicas em Supercondutores	26
		2.2.3	Invariância de Calibre	28

		2.2.4 As equações de London	31
3	3 O efeito Josephson		
	3.1	Equações Josephson	37
		3.1.1 Primeira equação de Josephson segundo Feynman	38
	3.2	Primeira equação de Josephson via modelo quântico macroscópico	42
	3.3	Segunda equação de Josephson	43
	3.4	Interferência quântica em junções sob campo magnético aplicado .	44
	3.5	Corrente de tunelamento	49
4	4 Confecção e caracterização de amostras de Hg,Re-1223		
	4.1	Um breve descrição quanto à fabricação da amostra de Hg,Re-1223	53
	4.2	Medidas de transporte $J_c(H)$	55
	4.3	Medidas de Susceptibilidade AC	57
5	Мо	delagem de $J_c(H)$ em bulks cerâmicos supercondutores	61
6	6 A Susceptibilidade Magnética e a distribuição de tamanhos <i>l</i>		
	das	junções no supercondutor Hg,Re-1223	66
	6.1	Susceptibilidade magnética versus H	66
	6.2	Distribuição de tamanhos L de junção na amostra	69
7	$J_c(I$	H) em supercondutores policristalinos	74
	7.1	Descrição teórica	74
	7.2	Modelagem estatística de $J_c(H)$	76
	7.3	Singularidade matemática do modelo ($lpha=\pi/2$)	80

8	Modelo estatístico de $J_c(H)$ corrigido para amostras cerâmicas			
	policristalinas de Hg,Re-1223			
	8.1 Melhorias no modelo estatístico de corrente crítica	82		
9	Caracterização da Energia de <i>Pinning</i>	87		
	9.1 Análise da Corrente Crítica	91		
10	Modelo de corrente crítica para compostos policristalinos com			
	uma solução sólida de duas fases supercondutoras	95		
11	Conclusões 1	.03		
Re	Referências Bibliográficas 107			

Capítulo 1

Introdução

1.1 Condução em Metais

A descoberta do elétron em 1897, por J. J. Thomson (1), gerou um grande impacto nas teorias de estrutura da matéria e sugeriu um mecanismo óbvio para a condução em metais. No último ano do século XIX, Drude (2; 3) constrói uma teoria para a condução elétrica e térmica num gás de elétrons. Em síntese, Drude considera que os elétrons da banda de valência dos átomos da rede podem se mover livremente pelo metal formando um gás de elétrons, isso ocorre porque quando os átomos isolados se condensam para formar o metal, os elétrons permanecem ligados ao núcleo atômico para formar um íon metálico, exceto os da banda de valência, estes ficam livres para se moverem pelos demais atômos que compõem o metal. Desta forma Drude aplica a teoria cinética de gases para um gás de elétrons condutores de massa m que se movem em um espaço permeado por íons pesados e imóveis. A figura 1.1 representa a ideia do movimento dos eletrons no interior do metal adotado à época.



Figura 1.1: Trajétoria do elétron segundo o Modelo de Drude após sucessivos espalhamentos. Reprodução da Ref. (4)

Entre um colisão e outra existe um tempo médio de liberdade, conhecido também como tempo de relaxação, τ , se consideramos que neste intervalo de tempo o elétron sofre a ação de um força elétrica igual a $e\mathbf{E}$ obtemos a relação para a densidade de corrente

$$\vec{J} = \sigma \vec{E}.\tag{1.1}$$

Onde $\sigma = \frac{ne^2\tau}{m}$ representa a condutivade elétrica do metal e n é a densidade de portadores de carga. A resistividade ρ é obtida a partir da condutividade e é dada por

$$\rho = \frac{m}{ne^2}\tau^{-1}.\tag{1.2}$$

Num metal típico podemos observar três tipos de processos de espalhamento, um por impurezas, outro por interações elétron-elétron e outro ainda por colisões phonon-elétron. Estes são processo independentes e contribuem para a taxa de espalhamento efetivo

$$\tau^{-1} = \tau_{imp}^{-1} + \tau_{el-el}^{-1} + \tau_{el-ph}^{-1}, \qquad (1.3)$$

onde τ_{imp}^{-1} é a taxa de espalhamento por impurezas, τ_{el-el}^{-1} é taxa de espalhamento por interação elétron-elétron e τ_{el-ph}^{-1} é a taxa de espalhamento por interação elétron-phonon.

Usando 1.3 em 1.2 e considerando que τ_{imp}^{-1} essencialmente não depende da temperatura, enquanto τ_{el-el}^{-1} e τ_{el-ph}^{-1} apresentam dependência em relação a temperatura do metal, obtém-se a expressão para a resistividade dos metais

$$\rho = \rho_0 + aT^2 + \dots \tag{1.4}$$

Neste caso ρ_0 representa um resistividade residual à temperatura zero que depende exclusivamento da concentração de impurezas no metal.

Assim sendo, em se tratando da resistência do metais decrescer com queda da temperatura três possíveis comportamentos poderiam ser esperados, observe a figura 1.2. Um primeira hipótese surgiria se a resistividade elétrica se desse inteiramente pela obstrução das trajetórias do elétrons pelas vibrações térmicas da rede, a cessão dessas vibrações faria a resistividade tender a zero. Uma outra possibilidade seria que a resistividade estivesse ligada às impurezas e imperfeições do material isso faria com que a resistividade caísse a baixas temperaturas, sem atingir o zero. Por fim acreditávasse que se caso houvesse algum mecanismo de condensação que diminuísse a número de portadores de carga haveria uma inversão no comportamento de proporcionalidade direta, fazendo assim a resistividade crescer para baixas temperaturas.



Figura 1.2: O gráfico apresenta os três comportamentos esperados para resistividade à baixas temperaturas. A curva 1 indica que $R \to 0$, a curva 2 prevê $R \to const$. e a curva 3 prevê $R \to \infty$.

1.2 Origem da Supercondutividade

Em 1908, Kamerlingh Onnes obteve sucesso na liquefação do Hélio (5), no primeiro laboratório de criogênia do mundo, em Leiden na Holanda. Isso fez com que ele pudesse estudar as propriedades dos materiais a baixíssimas temperaturas, em especial havia grande interesse em estudar a resitência elétrica do metais nessas condições.

O próprio Onnes acreditava que uma das possibilidades descritas na seção anterior viesse a ocorrer, contudo os resultados experimentais obtidos a partir da análise da Platina com alta pureza não apresentaram qualquer mínimo ou tendência de zero, apresentando uma resistência constante a baixas temperaturas. Assim, em 1911, Onnes (6) repetiu a experiência com o metal que se podia obter, na época, com maior grau de pureza, o Mercúrio.



Figura 1.3: Resistividade versus temperatura para o Mercúrio. Reprodução da Ref. (7)

Os resultados apresentados na Figura 1.3 mostram um queda abrupta da resistividade à zero a partir de 4,2 K, tal comportamento não era previsto e contradizia todas as hipóteses aceitas à época, Onnes ainda repetiu a experiências com Mercúrio em níveis de pureza distintas e constatou que a curva apresentada em nada tinha a ver com o grau de pureza do metal, se tratava de um novo estado, a qual o próprio Onnes chamou de estado supercondutor.

Essa temperatura, a qual se dá a transformação de estado, é denominada temperatura crítica (T_c) . No ano seguinte Onnes descobriu que a aplicação de um intenso campo magnético destruía o estado de supercondutividade. Dava-se início a procura de outros materiais que também apresentassem o estado supercondutor. Ficou claro que apenas alguns metais, por exemplo, Chumbo (Pb) e Nióbio (Nb), apresentavam tais características.

1.3 A busca por respostas

Em paralelo a busca de novos elementos ou ligas supercondutoras havia também o interesse na descrição teórica do fenômeno. Em 1933, Meissner e Oschenfeld (8) descobriram que se uma substância supercondutora for resfriada abaixo de sua temperatura crítica na presença de um campo magnético aplicado, ela expulsa todo e qualquer fluxo magnético de seu interior. Se o campo é aplicado depois que a amostra já se encontra abaixo da temperatura crítica, o fluxo é excluído do supercondutor. Portanto tem-se um diamagnético perfeito. Esse fenômeno ficou conhecido como efeito Meissner e mostrou-se mais fundamental do que a resistividade nula, pois essa era uma consequência da exclusão do campo. Em 1935 os irmãos London propuseram duas equações baseadas no eletromagnetismo para descrever a supercondutividade e o efeito Meissner (9). Essas mesmas equações mais tarde puderam ser obtidas através da mecânica quântica a partir de alguns argumentos da teoria de dois fluidos de Gorter e Casimir (10), no entanto a teoria, que descrevia o fenômeno, não explicava a ocorrência da supercondutividade.

Em 1950, os físicos soviéticos V. L. Ginzburg e L. D. Landau (11) desenvolvem uma teoria fenomenológica para explicar as propriedades termodinâmicas da transição do estado normal para o supercondutor. Embora originalmente fenomenológica, a teoria provou ser exata e muito poderosa.

Em 1956, Cooper (12) demonstrou que dois elétrons abaixo do nível de Fermi poderiam interagir atrativamente, levando em consideração o princípio da exclusão de Pauli. Segundo Cooper, os dois elétrons interagem fracamente através das vibrações das redes. Esses dois elétrons formam os pares de Cooper e são responsáveis pela supercondutividade num determinado material. No ano seguinte, uma teoria microscópica da supercondutividade é formulada por Bardeen, Cooper e Schrieffer (teoria BCS) (13). É uma teoria elegante que conseguiu explicar, a partir dos primeiros princípios, o fenômeno da supercondutividade que ocorre principalmente nos materiais que possuem temperatura crítica abaixo de 39 K. A teoria BCS explica a origem da supercondutividade, dando fundamento às teorias de London e Ginzburg - Landau. Esta teoria conseguiu explicar os fatos observados na época. Atualmente, os supercondutores a altas temperaturas críticas ainda esperam por uma teoria microscópica que explique a natureza de sua origem.

Em 1962, o Físico Inglês B. D. Josephson prediz, baseado na teoria BCS, que dois materiais supercondutores em contato (junção) devem apresentar propriedades específicas (14). Tal fenômeno, hoje conhecido como efeito Josephson, foi comprovado posteriormente em laboratório. Brian Josephson elaborou uma teoria propondo que dois supercondutores separados por uma película de isolante, formavam uma junção, hoje conhecida em todo o mundo como junção Josephson. De acordo com Josephson, nesta junção, os pares de Cooper podem tunelar de um supercondutor para outro. Esta corrente de tunelamento, que é observada mesmo na ausência de uma tensão aplicada como será visto mais adiante, é dada por $I = I_{max} \sin(\delta_2 - \delta_1)$, onde I_{max} é a corrente de tunelamento máxima, que depende da espessura do isolante e das propriedades locais dos supercodutores que conformam a junção, δ é a fase da função de onda dos pares de Cooper nos supercondutores.

1.4 Novos horizontes

Em 1973, o físico norte-americano B. Matthias, ainda na linha do metais ou ligas, descobre o composto Nb_3Ge (15), com uma temperatura crítica de 23 K. Matthias morreu acreditando que jamais existiriam supercondutores com T_c acima de 30 K.

Enquanto isso ainda em 1971 Chevrel (16) muda o rumo das buscas por novos supercondutores, quando apresenta a supercondutividade em sulfetos ternários, esses compostos ficaram conhecidos como "fases de Chevrel", e em 1975 Sleight (17) descobre a superconduitividade no composto $BaPb_{1-x}Bi_xO_9$, um pseudo ternário. Variações estequiométricas deste composto apresentavam um pico de temperatura crítica. Estudos efetuados por Than (18) mostraram que ao máximo da temperatura crítica do composto estava associada a uma baixa concentração de portadores de carga. Essa baixa concentração apresentava o nível de Fermi na metade da banda d. Como essa banda apresenta alta densidade de estados, a interação elétron-fônon é favorecida. Ao mudar a estequiometria do composto a fim de atingir a temperatura crítica máxima, o nível de Fermi sobe, favorecendo a interação forte entre elétrons. Essa interação inibe o acoplamento entre os elétrons via um fônon.

A partir desses trabalhos e das considerações de Michel (19) que examinava a valência mista do cobre em compostos a base de óxidos de Cobre, Lantâneo e metais alcalinos terrosos, Bednorz e Müller¹ começaram a investigar a possibilidade da composição acima apresentar características supercondutoras. O estudo culminou no trabalho pioneiro deles (20). A descoberta da supercondutividade nos compostos do sistemas La-Ba-Cu-O deu novo fôlego aos pesquisadores da época e um ano depois os físicos americanos Paul Chu e M. K. Wu (21) descobrem o sistema composto por Y-Ba-Cu-O. Estavam descobertos os óxidos supercondutores, que vieram para revolucionar os materiais supercondutores com relação à temperatura crítica dos mesmos, permitindo assim atingir valores de T_c que estão acima da temperatura do Nitrogênio líquido (77 K). Isso facilitou os estudos destes materiais devido à facilidade de produção do Nitrogênio líquido em relação ao Hélio líquido que era usado nos outros compósitos. No começo do ano de 1988, a temperatura crítica atingia um novo patamar, de 110 K, com a descoberta do novo sistema Bi-Sr-Ca-Cu-O.

Em 1988 foi anunciado por A. M. Hermann e Z. Z. Sheng (22) da Universidade

¹Em 1987 Bednorz e Müller receberam o prêmio Nobel. A primeira grande conferência de matéria condensada após a descoberta ocorreu no mesmo ano em Nova York e contou com um sessão destinada à descoberta. A sala de conferência ficou lotada e pelos corredores do prédio muitas pessoas se aglomeravam para assitir pela TV, a sessão entrou noite a dentro e acabou de madrugada, no outro dia o jornal *The New York Times* se reportou ao evento como "Woodstock of Physics".

do Arkansas o composto de Tl-Ba-Ca-Cu-O com $T_c = 120K$. Logo a seguir em 1993 foi descoberto por Putilin (23) a supercondutividade no composto Hg-Ba-Cu-O e alguns meses depois Schilling (24) apresenta o composto de Hg-Ba-Ca-Cu-O, com $T_c = 133K$. Estudos realizados com pressão hidrostática externa aplicada nestes materiais revelaram que a temperatura crítica pode atingir valores da ordem de 160K (25).

A partir de 1992 surgiram relatos de supercondutividade a 100 K no sistema Sr-Cu-O (26) e a 110 K no sistema Ca-Sr-Cu-O após tratamento a pressões elevadas (27).

Considerando apenas a cronologia das descobertas (Figura 1.4), pode-se classificar o período que compreende a descoberta dos supercondutores até o ano de 1986 como sendo bem representado pela supercondutividade das ligas de Nióbio e pelo modelo BCS com orbitais do tipo s e interação elétron-fônon. A partir de 1986, passou-se a lidar com supercondutores a base de óxido de Cobre e a descrição BCS passou a ser do tipo p e d com hibridizações. Nesse caso a interação entre os portadores de carga não é bem estabelecida, gerando uma variedade de interpretações.

Passada a euforia das altas temperaturas críticas apresentadas pelos cupratos (denominação dadas aos supercondutores cerâmicos que continham Cu-O) outros compostos com temperaturas críticas abaixo do limiar da liquefação do Nitrogênio passaram a apresentar características supercondutoras, surgindo assim novas famílias de compósitos supercondutores, como os Supercondutores de Férmions Pesados (1979) (28), os Supercondutores Orgânicos (1981) (29), os Fullerides (1991) (30) e o Pnictídios de Ferro (2008) (31). A Figura 1.4 situa as descobertas de alguns supercondutores temporalmente ao passo que mostra suas



Figura 1.4: Cronologia das descobertas de novos supercondutores. Reprodução da Ref. (43)

temperaturas críticas.

1.5 Possíveis aplicações de supercondutores

Quando se fala em aplicação de supercondutores, trÊs características devem ser otimizadas em função da aplicação prevista, são elas: a temperatura crítica T_c , o campo crítico B_c e a densidade de corrente crítica J_c . Fato é que existem outra variantes, contudo as citadas tem um papel predominante quanto às caracteríticas do supercondutor. No que diz repeito a parte de confecção e adaptação para utilização pode-se citar caracteríticas como as técnicas envolvidas na preparação, as propriedades mecânicas, o custo-benefício, o tamanho do dispositivo, dentre outras.

Existem muitas aplicações importantes da supercondutividade. Uma aplicação óbvia e na construção de ímãs supercondutores onde os campos provêm de correntes que circulam sem resitência no enrolamentos dos eletroímãs. Uma dificuldade vem do fato que os campos magnéticos tendem a penetrar os fios do enrolamentos e destruir sua supercondutividade. Estão sendo feitos progressos na procura do que se chama supercondutores tipo 2, cujos os pares de Cooper têm dimensões suficientemente pequenas permitir que o campo magnético atravessa o fio através de canais localizados. Este canais perdem sua supercondutividade, mas a região entre permanece supercondutora.

Os supercondutores cerâmicos de altas temperatura crítica são quebradiços e por isso não se permite conformá-los em fios. Entretanto, com o avanço de novas técnicas, já é possível obter fios com cerâmicas supercondutoras. A técnica usada é a *Powder-In-Tube*, que consiste em reduzi o material a pó e inserí-lo num tubo metálico, geralmente de prata. Em seguida, o tudo é extrudado na forma de fio e finaliza-se o processo com um tratamento térmico em altas temperaturas. Este cabo supercondutor está sendo aplicado experimentalmente em linhas de transmissão de curta extensão em alguns países.

A ausência de dissipação de potência em elementos supercondutores torna possível várias aplicações eletrônicas onde exigências de espaço e tempo de transmissão são sérias, como nos computadores. Como os supercondutores são diamagnéticos perfeitos, pode ser usados para blindar fluxos magnéticos indesejáveis. Isso pode se utilizado na confecção de lentes magnéticas de um microscópio eletrônico. Outro exemplo em pequena escala seriam dispositivos baseados no tunelamento de para de Cooper através de uma barreira isolante entre dois eletrodos supercondutores (Junções Josephson), especificamente, o dispositivo SQUID -*Supercondunting Quantum Interference Device*. O SQUID é um detector sensível de fluxo magnético por isso tornou-se indispensável em pesquisas científicas e tecnológicas.

Outro dispositivo bastante promissor são os limitadores de corrente de falta supercondutores. Esta ideia não énova, existem alguns dispositivos desde a década de 70, a base de supercondutores de baixa T_c . Novas proposta de protótipos tem sido desenvolvidas utilizando supercondutores óxidos de alta T_c .

Paras esses dispositivos o conhecimento mais aprofundado da resposta da corrente crítica macroscópica à presença de campo magnética aplicado é crucial para a evolução e desenvolvimento de novos protótipos.

1.6 Corrente crítica em amostras supercondutoras policristalinas de alta T_c

Conforme descrito na seções inicias deste Capítulo, os supercondutores cerâmicos policristalinos possuem a mais alta T_c dentres os demais conhecidos atualmente. Tais materiais possuem a estrutura formada por várias cristais (denominados grãos) na maioria supercondutores, separados por regiões não supercondutoras ou supercondutoras fracas, chamadas de junções. As amostras que serma estudadas neste trabalho se encaixam neste perfil e pertencem ao sistema Hg,Re-1223.

As propriedades físicas desses materiais são bem mais complicadas do que àquelas em materiais monocristalinos. Nos materiais policristalinos as propriedades físicas dos grãos são bastante diferentes daquelas entre os mesmos, ou seja, nas junções. Portanto, para entender-se a física desse materiais é preciso estudar tanto suas propriedades nos grãos (intragranulares) como àquelas entre os grãos (intergranulares).

A corrente elétrica nos supercondutores poliscristalinos atravessa o material segundo um quadro percolativo, ou seja, a corrente se espalha por todo o material passando de grão em grão até percorrer o caminho total entre os eletrodos nas extermidades da amostra. A corrente crítica nesses supercondutores dá-se nas regiões entre os grãos. Isto ocorre por que as junções entre os grãos possuem propriedades de condução diferentes das do interior dos grãos. Logo, quando mensura-se a corrente crítica em laboratório, ao menos para valores não muito altos de corrente, esta se medindo a corrente crítica intergranular, pois é nessa região que ocorrem os primeiros focos de dissipassam de calor.

Muitos estudos do comportamento da corrente crítica intergranular em ma-

teriais policristalinos já foram realizados e estão sendo realizados. Essa grandez física pode depender da temperatura, do campo aplicado e da microestrutura do material. Neste trabalho considera-se que as junções entre os grãos controlam os valores de corrente crítica, estudou-se como esse valroes são influenciados pela presença de campo magnético aplicado. Será introduzida uma nova proposta de descrição das junções entre os grãos, na qual considera-se que para as amostras de Hg,Re-1223 desenvolvidas e analisadas as junções entre os grãos assumem um estrutura do tipo $S_1S_2IS_2S_1$ (Supercondutor 1 - Supercondutor 2 - Isolante -Supercondutor 2 - Supercondutor 1).

O Estudo de junções foi iniciado pelos pesquisadores, pioneiros na modelagem de $J_c(H)$ em amostras cerâmicas supercondutoras policristalinas, Peterson e Ekin (32). A influência da história magnética no comportamento de $J_c(H)$ foi introduzida (33; 34). Mezzeti et al. (35) que tentaram ligar as propriedades da família supercondutor do *bulk* com a distribuição do tamanho das junções de modo que a modelagem foi expandida analiticamente para qualquer valor de campo magnético aplicado. Gonzalez et al. (36) demonstrou que era possível usar uma distribuição tipo Gamma para modelar os tamanhos de junções, L, obtendo uma expressão para $J_c(H)$ dependendente dos parâmetros de forma e escala da distribuição Gamma. Todas as propostas foram consideradas para cerâmicas policristalinas cujas junções são SIS (Superconductor - Isolante - Superconductor) ou SNS (Superconductor - Normal - Superconductor).

Considerando trabalhos prévios (32; 36; 37; 38; 39) em que foi utilizado o modelo de junção SIS, uma melhoria do modelo de densidade de corrente crítica é proposto aqui, considerando o modelo junção $S_1S_2IS_2S_1$ para descrever as junções intergrãos de compostos com uma mistura intrínseca de duas fases supercondutoras. A mistura é ilustrada aqui pelas junções presentes no composto policristalino de Hg,Re-1223. O *bulk* policristalino Hg, Re-1223 apresenta uma única intrínseca solução sólida não homogênea de duas fases supercondutoras mistas, Hg-1223 e Hg,Re-1223 (40; 41). As junções entre os grãos aqui propostas foram modeladas como $S_1S_2IS_2S_1$, em que 1 representa a solução sólida rica em Hg,Re-1223 e fase 2 representa a solução sólida rica em Hg-1223 (41). A borda de cada grão no composto policristalino rotulado como Hg,Re-1223 sob a forma de *bulk* mostra uma solução sólida com alto teor de Hg-1223 de fase (42).

No caso simplificado de uma junção SIS para compostos policristalinos homogêneos, t_B foi assumido como uma constante a uma dada temperatura (32; 35; 36; 37). No entanto, no caso de compostos policristalinos com duas regiões supercondutores, onde a região 1 é a parte maciça do grão e a região 2 abrange a fronteira do grão, o modelo de junção SIS é alterada pela proposta de modelo de junção $S_1S_2IS_2S_1$.

Este trabalho propõe um aprimoramento do modelo que descreve a densidade de corrente crítica, considerando o modelo junção $S_1S_2IS_2S_1$ para descrever as junções intergrãos de compostos com uma mistura intrínseca de duas fases supercondutoras.
Capítulo 2

Fenômeno quântico macroscópico

2.1 Propriedades básicas de supercondutores

2.1.1 Resistividade Zero

Um supercondutor abaixo de T_c apresentará resistividade nula, $\rho = 0$, e condutividade infinita. Mesmo assim a densidade de corrente, J pode ser finita. Outro ponto nesta caracterísitica é o fato da resistência nula ser atingida instantaneamente. Isso nos faz lembrar das transições de fase da matéria, onde um substância muda de fase alterando em parte ou totalmente suas propriedades físicas. Neste caso acima da T_c o material supercondutor apresenta resistência e características elétricas semelhantes a de um metal normal e abaixo da temperatura crítica o estado supercondutor se manifesta, com resitência elétrica nula, o que faz com que as novas propriedades elétricas do material sejam bem diferentes das apresentadas por metais normais.

Alguns supercondutores, em especial os de alta T_c , tem a queda de resitên-

cia ligeiramente inclinada em relação à vertical como mostra a figura 2.1, este comportamento se deve às flutuações termodinâmicas críticas associadas com a transição de fase.



Figura 2.1: ρ versus T do supercondutor HgBaCaCuO, observe a ligeira inclinação na queda brusca da ρ .

Por fim algo que também chama a atenção é fato de ρ ser exatamente zero. Isso pode parecer força de expressão, qualquer um poderia pensar que a resistividade é quase zero, ou seja, com um certa precisão ela poderia ser zero, mas não é bem assim, ρ é exatamente zero. Uma evidência bem convincente de que realmente $\rho = 0$ é a observação de correntes persistentes. O experimento é simples, dispõe-se de um anel de fio supercondutor, à temperatura ambiente, aplica-se campo magnético perpendicular ao plano do anel, em seguida resfria-se o sistema abaixo da T_c do material a qual o anel foi confeccionado, em seguida extingui-se a fonte de campo magnético. A Figura 2.2 mostra a sequência descrita para realização do experimento.

A Lei de Faraday mostra que

$$-\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \nabla \times \vec{E}.$$
(2.1)



Figura 2.2: O esquema apresenta os procedimentos para realização de um experimento simples onde interessa analisar a corrente presistente que se formará no anel supercondutor. Reprodução da Ref. (43).

Quando a fonte de campo magnético for extinta surgirá uma corrente I no anel supercondutor a fim de que a Lei de Faraday seja respeitada.

Caso o supercondutor apresente um resistência, por mínima que seja, a corrente no anel decairá respeitando a relação

$$I(t) = I_0 e^{\frac{\Delta R}{L}t} \tag{2.2}$$

onde R e L são, respectivamente, a resistência e perímetro da circunferência do anel supercondutor. Para se ter uma ideia para decair 10% em 1 ano a resistência do anel deveria ser menor que $10^{-17}\Omega$. Experimentos realizados segundo a descrição acima em supercondutores indicam correntes persistentes que por anos não apresentaram qualquer decaimento.

2.1.2 Efeito Meissner-Ochsenfeld

A resisitividade nula é um característica muito marcante dos supercondutores, talvez por conta do nome dado a esse materiais, contudo uma prova fundamental de que o material é supercondutor é a demonstração do efeito MeissnerOchsenfeld¹. Foram Meissner e Ochsenfeld, em 1933, os primeiros a mostrar que algumas das previsões para condutores perfeitos não eram verificadas em supercondutores. Eles descobriram que para um supercondutor o campo magnético no interior do mesmo correspondia sempre a campo nulo, isso no estado supercondutor, ou seja, no interior de um supercondutor abaixo da temperatura crítica e na presença de campo magnético externo

$$B_i = 0. (2.3)$$

A Figura 2.3 mostra o comportamento de campo magnético nulo no interior de um supercondutor que foi resfriado e imerso em campo magnético e vice e versa.

Existem bons experimentos que podem mostrar claramente a expulsão do fluxo magnético em supercondutores, assim, definir que um material é supercondutor caso ele apresente o efeito Meissner-Ochsenfeld é muito mais prático do que analisar a resistividade e se prender a detalhes como os contatos elétricos utilizados no experimento ou ficar alguns anos observando a corrente persistente num anel, contudo a razão mais fundamental a se considerar é que o efeito Meissner-Ochsenfeld é uma propriedade de equilíbrio térmico, enquanto que a resistividade é um efeito de transporte instável. Perceba que o estado final do supercondutor $(B_i = 0)$ não depende do histórico da amostra, o que é um condição necessária para o equilibrio térmico.

 $^{^{1}}$ Até 1933 as predições sobre o comportamente magnético de um condutor perfeito eram supostas verdadeiras para um supercondutor, isto parecia tão óbvio que ninguém pensou em testá-las.



Figura 2.3: Independente do histórico de aplicação do campo, em quaisquer condições o supercondutor verdadeiro apresenta campo magnético nulo no seu interior quando abaixo da temperatura crítica. Reprodução da Ref. (43).

2.1.3 Diamagnetismo perfeito

Considerando que $\vec{B} = 0$ no interior do supercondutor, quando abaixo da temperatura crítica, a corrente total no interior da amostra poderá ser dividida em corrente aplicada externamente, j_{ext} , e corrente de blindagem interna, j_{int} ,

$$j = j_{int} + j_{ext}.$$
(2.4)

O campo magnético total no interior da amostra deverá considerar a magnetização gerada pela corrente de blindagem e a indução gerada pela corrente aplicada, sendo assim

$$\vec{B} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M}).$$
 (2.5)

Impondo a condição de efeito Meissner, B = 0, na equação 2.5 obtém-se imediatamente que $\vec{M} = -\vec{H}$. A susceptibilidade magnética é definida por

$$\chi = \frac{dM}{dH}_{H=0}.$$
(2.6)

Neste caso para o supercondutores $\chi = -1$, os sólidos com $\chi < 0$ são chamados diamagnetos, enquanto que os com $\chi > 0$ são chamados paramagnéticos. Os supercondutores blindam completamente o campo magnético, enquanto que os diamagnetos comuns blindam parcialmente. Esse comportamento dos supercondutores é chamado de diamagnetismo perfeito. Como foi dito na seção anterior identifica-se um supercondutor quando se evidencia o efeito Meissner-Ochsenfeld na amostra, um forma de fazer isso é analisar a susceptibilidade magnética em função da temperatura, caso seja medido $\chi = -1$ diz-se que a amostra é supercondutora.

2.2 Um modelo quântico macroscópico

No princípio acreditava-se que a mecânica quântica apenas manifestaria suas predições em níveis atômicos, neste caso algumas grandezas representativas se apresentariam, em certas condições, quantizadas. Por muito tempo acreditou-se que em escalas macroscópicas, dimensões maiores que $10^{-10}m$, seria impossível observar propriedades quantizadas, contudo com o decorrer do tempo, um grande número de fenômenos se mostraram quânticos em escalas macroscópicas, em particular a supercondutividade, por exemplo podemos observar a quantização do fluxo num anel supercondutor com dimensões macroscópicas. Desta forma, nesta seção, consideramos o elétron supercondutor como uma entidade quântica simples e estudamos suas propriedades num sistema supercondutor.

2.2.1 Fenômeno de coerência na supercondutividade

Ao ser revelada, em 1908, a supercondutividade trouxe muito mais do que fascínio pelas novas propriedades apresentadas. Como tudo em física, surgiu também a necessidade de se entender quais leis regiam esse fenômeno, principalmente após 1933, com a descoberta do efeito Meissner-Ochesenfeld. Umas das primeiras tentativas coube a Fritz e Heinz London (9). Os irmãos London, a partir da teoria clássica de eletromagnetismo, propuseram duas equações para explicar como se dava a condutividade perfeita e o diamegnetismo perfeito em supercondutores metálicos, uma proposta fenomenológica bem arranjada, mas incapaz de explicar a origem do fenômeno de supercondutividade. Em 1948, caberia a Fritz London encontrar as mesmas equações de ideias mais fundamentais, se o fluído superelétron for tratado como uma entidade quântica. Fritz conlui seus trabalhos convencido de que a supercondutividade seria uma inerente manifestação de um fenômeno quântico em escala macroscópica.

Desta forma será proposto analisar a supercondutividade através de um modelo quântico macroscópico baseado na hipótese de que existe uma função de onda macroscópica que descreve o comportamento do conjunto de superelétrons. Essa hipótese é justificada pela teoria microscópica BCS (13), visto que podemos supor que as funções de onda dos elétrons individuais podem se sobrepor originando um função de onda para o conjunto de superelétrons condutores.

A justificativa para se considerar a supercondutividade como um fenômeno coerente é justamente esta, pois fenômenos coerentes são aqueles em que a função de onda das partículas envolvidas se sobrepõe gerando um estado quântico novo, diferente dos anteriores. Para descrever a supercondutividade como um fenômeno de coerência quântica macroscópica é necessário fazer uso da mecânica quântica conhecida, partindo da equação de Schroedinger. Para um sistema quântico simples com uma partícula envolvida, existe uma função de onde $\psi(\vec{r},t)$ que descreve todas a informações da partícula. Essa função de onda é semelhante às ondas ópticas

$$\psi(\vec{r},t) = Ae^{\frac{i}{\hbar}(\vec{p}.\vec{r}-Et)}.$$
(2.7)

Schroedinger postulou que a função de onda evolui temporalmente segundo a equação

$$i\hbar\frac{\partial\psi(\vec{r},t)}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2\psi(\vec{r},t) + V(\vec{r},t)\psi(\vec{r},t).$$
(2.8)

Introduzindo a expressão para função de onda 2.7 na equação de Schroedinger

percebe-se que a fase absoluta da função não pode ser arbitrária, sendo um quantidade mensurável e com significado físico. Max Born propõe que $|\psi|^2 = \rho(\vec{r},t)$ como sendo a probabilidade de encontrar um objeto quântico em \vec{r} num tempo t. Essa probabilidade evolui com o tempo e possui um restrição global, também chamada de condição de normalização que é $\int_{-\infty}^{\infty} \rho dv = 1$. O comportamento temporal de ρ pode ser obtido a partir da equação de Schroedinger e conduz à equação de conservação de probabilidade

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla . \vec{J_{\rho}} = 0, \qquad (2.9)$$

que pode ser interpretada como um restrição local, neste caso definiu-se J_{ρ} como sendo a corrente de probabilidade expressa por

$$\vec{J}_{\rho} = -\frac{i\hbar}{2m}(\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^*), \qquad (2.10)$$

que apesar de ser real não é mensurável.

Assim, considerando o caso simples (contudo mais próximo do problema supercondutor) de uma partícula carregada movendo-se em meio a um campo eletromagnético, a equação de Schroedinger assume a forma

$$i\hbar\frac{\partial\psi}{\partial t} = \frac{1}{2m} \left(\frac{\hbar}{i}\nabla - q\vec{A}\right)^2 \psi + q\phi\psi \qquad (2.11)$$

e a corrente de probabilidade

$$\vec{J}_{\rho} = \Re \left\{ \psi^* \left(\frac{\hbar}{im} \nabla - \frac{q}{m} A \right) \psi \right\}$$
(2.12)

2.2.2 Correntes quânticas macroscópicas em Supercondutores

Por simplicidade considere primeiro um metal condutor normal, numa aproximação em que os elétrons são fracamente ou não interagentes, as partículas se movem segundo

$$i\hbar\frac{\partial\psi}{\partial t} = \hat{H}\psi, \qquad (2.13)$$

neste caso a função de onda dos portadores de carga é

$$\psi(\vec{r},t) = \psi_0(\vec{r})e^{i\theta(\vec{r},t)} \tag{2.14}$$

e $|\psi|^2$ é densidade de probabilidade das partículas. Pode-se reduzir a equação 2.13 introduzindo a função de onda 2.14 obtendo

$$\hbar \frac{\partial \theta}{\partial t} = -E, \qquad (2.15)$$

agora o que interessa para entender-se o movimento das partículas carregadas no interior do metal é a fase da função de onda associada aos conjunto de partículas envolvidas na condução. No condutor normal os elétrons obedecem à estátistica de Fermi-Dirac e, portanto, não podem ter energias iguais, assim a evolução temporal da fase difere para cada portador.

Nos supercondutores os pares de Cooper devem possuir momentos opostos e spins opostos. Os pares com spin zero obedecem à estatística de Bose-Einstein, desta forma ocupam estados de menor energia a baixas temperaturas, neste caso $\frac{\partial\theta}{\partial t}$ é igual para todos os pares. Outro ponto importante é que o tamanho médio dos pares de Cooper está em torno de 10 - 1000 nm, isso é muito maior que a distância de um par em relação a outro, assim espera-se que as funções de onda dos pares sejam fortemente sobrepostas. Como resultado os pares podem ser descritos por uma função de onda Ψ , também denotada parâmetro de Ordem. Neste caso as fases não interferem destrutivamente quando somadas sobre todas as partículas, o que faz com que algumas variáveis quânticas macroscópicas possam depender da fase θ , efeitos frente a aplicação de campo magnético podem ser observados, principalmente se considerando efeitos coerentes como a quantização do fluxo e tunelamento Josephson.

A ideia central do modelo quântico macroscópico da supercondutividade é que existe um função de onda que descreve o comportamento de todos o superelétrons no interior do supercondutor,

$$\Psi(\vec{r},t) = \Psi_0(\vec{r})e^{i\theta(\vec{r},t)}.$$
(2.16)

Esta hipótese se apoia no fato da supercondutividade ser um fenômeno coerente para todos o superelétrons envolvidos na condução. Como consequência de se postular um ensemble quântico de superelétrons tem-se o número total de superelétrons como

$$N_s^* = \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi^* \Psi dV \tag{2.17}$$

e desta forma, a densidade local de superelétrons $n_s^* = |\Psi(\vec{r},t)|^2$.

Com isso tem-se um equação de continuidade para densidade local de superelétrons 2.9 e um fluxo de partículas $\vec{J_s}$, que nada mais é que a corrente física, descrita por

$$\vec{J}_s = \Re \left\{ \Psi^* \left(\frac{\hbar}{im^*} \nabla - \frac{q^*}{m^*} \vec{A} \right) \Psi \right\}, \qquad (2.18)$$

$$\vec{J}_s = \frac{q^*\hbar}{2m^*i} (\Psi^* \nabla \Psi - \Psi \nabla \Psi^*) - \frac{q^{*2}}{m^*} \Psi \Psi^* \vec{A}, \qquad (2.19)$$

onde m^* é a massa e q^* a carga do superelétron.

A função de onde Ψ é obtida da solução da equação de Schroedinger para o ensemble de superelétrons

$$i\hbar\frac{\partial\Psi(\vec{r},t)}{\partial t} = \frac{1}{2m^*} \left(\frac{\hbar}{i}\nabla - q^*\vec{A}(\vec{r},t)\right)^2 \Psi(\vec{r},t) + q^*\phi(\vec{r},t)\Psi(\vec{r},t)$$
(2.20)

e tem a forma

$$\Psi(\vec{r},t) = \sqrt{n_s^*(\vec{r})}e^{i\theta(\vec{r},t)}.$$
(2.21)

Assim usando 2.21 em 2.19 obtem-se

$$\vec{J}_s = q^* n_s^*(\vec{r}) \left[\frac{\hbar}{m^*} \nabla \theta(\vec{r},t) - \frac{q^*}{m^*} \vec{A}(\vec{r},t) \right]$$
(2.22)

e a velocidade do superelétrons deve ser $v_s = \frac{\hbar}{m^*} \nabla \theta(\vec{r,t}) - \frac{q^*}{m^*} \vec{A}(\vec{r,t}).$

2.2.3 Invariância de Calibre

 $A, \phi \in \theta$ descrevem quantidades físicas, mas não são observáveis quânticos, desta forma precisa-se de transformações que correlacionem entes não observáveis com as quantidades observáveis $\vec{B}, \vec{E} \in \vec{J}_s$, estas transformações são conhecidas como **transformações de Calibre**. Quantidades não observáveis que se transformam de maneira bem definida, quando submetidas a uma transformação de Calibre,

são denotadas **Covariantes de Calibre**. Observáveis são quantidade determinadas diretamente a partir de medidas em experimentos.

Começando por \vec{A} , pode-se usar o Calibre de Coulomb $(\nabla . \vec{A})$, e tomando $\vec{B} = \nabla \times \vec{A}$, contudo $\nabla \times (\nabla f) = 0$, se f é escalar, isso faz com que um outro Calibre qualquer com $\vec{A} = \vec{A'} - \nabla \epsilon$, onde ϵ é um escalar, possa conduzir a um mesmo \vec{B} , visto que

$$\vec{B}' = \nabla \times \vec{A}' = \nabla \times (\vec{A} + \nabla \epsilon) = \nabla \times \vec{A} = \vec{B}$$
(2.23)

$$\vec{B}' = \vec{B} \tag{2.24}$$

Definindo $\vec{A'}=\vec{A}+\nabla\epsilon$ a Lei de Faraday fica

$$\vec{E} = -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} - \nabla \phi = -\frac{\partial \vec{A'}}{\partial t} - \nabla \phi'$$
(2.25)

e isso impõe que

$$\phi' = \phi - \frac{\partial \epsilon}{\partial t}.$$
(2.26)

Assim defini-se o Calibre usado como

$$\vec{A}' = \vec{A} + \nabla \epsilon, \qquad (2.27)$$

$$\phi' = \phi - \frac{\partial \epsilon}{\partial t},\tag{2.28}$$

Aplicando o Calibre determinado na equação de Schroedinger do ensemble Supercondutor 2.20 obtem-se a função de onda

$$\Psi'(\vec{r},t) = \sqrt{n_s^*(\vec{r})} e^{i\theta'(\vec{r},t)},$$
(2.29)

todavia analisando a densidade de corrente supercondutora $\vec{J_s}$ percebe-se que o Calibre usado impõe que $\theta' = \theta + \frac{q^*}{m^*}\epsilon$, a condição para isso ser verdade é que

$$\nabla \theta' - \frac{q^*}{\hbar} \vec{A}' = \nabla \theta - \frac{q^*}{\hbar} \vec{A}, \qquad (2.30)$$

isso garante que a corrente medida independe do Calibre utilizado e cria uma correlação entre as funções de onda dada por

$$\Psi'(\vec{r},t) = \Psi(\vec{r})e^{i\left(\frac{q^*}{m^*}\right)\epsilon}.$$
(2.31)

Além disso, pode-se introduzir um gradiente de fase invariante de Calibre $\vec{\gamma} = \nabla \theta - \frac{q^*}{\hbar} \vec{A}$ e reescrever a expressão 2.22, seja

$$\vec{J}_s = \frac{q^* n_s^* \hbar}{m^*} \vec{\gamma} = \frac{\hbar}{q^* \Lambda} \vec{\gamma}$$
(2.32)

onde

$$\Lambda \equiv \frac{m^*}{n_s^* q^{*2}} \tag{2.33}$$

é o *coeficiente London* e

$$\lambda_L \equiv \sqrt{\frac{m^*}{\mu_0 n_s^* q^{*2}}} \equiv \sqrt{\frac{\Lambda}{\mu_0}}$$
(2.34)

a profundidade de penetração London.

2.2.4 As equações de London

Fritz London, baseado nos conceitos de física clássica, descreve o comportamento dos supercondutores em duas equações. Abaixo pode-se ver que essas equações são obtidas facilmente através dos resultados da seção anterior. Para London a densidade local de superelétrons não varia, neste caso considera-se $n_s^* = constante$. Inserindo o coeficiente London 2.33 na equação 2.22 obtem-se

$$\Lambda \vec{J}_s = -\left\{ \vec{A}(\vec{r},t) - \frac{\hbar}{q^*} \nabla \theta(\vec{r},t) \right\}.$$
(2.35)

Primeira equação de London e a condutividade perfeita

A primeira equação de London, bem como o comportamente de condutividade perfeita, podem ser obtidos deriviando temporalmente a equação 2.35, segue

$$\frac{\partial(\Lambda \vec{J_s})}{\partial t} = -\left\{\frac{\partial \vec{A}(\vec{r},t)}{\partial t} - \frac{\hbar}{q^*}\nabla\left(\frac{\partial \theta(\vec{r},t)}{\partial t}\right)\right\}$$
(2.36)

A partir da equação de Schroedinger, eq. (2.11) para o ensemble supercondutor pode-se obter a relação de fase-energia

$$-\hbar\frac{\partial\theta}{\partial t} = \frac{1}{2n_s^*}\Lambda J_s^2 + q^*\phi.$$
(2.37)

Observe que o primeiro termo do lado direito da equação fornece a energia cinética do superelétrons.

Assim, introduzindo a equação 2.37 na equação 2.36 e considerando $\vec{E}\,=\,$

 $-\partial \vec{A}/\partial t - \nabla \phi$ obtem-se a primeira equação de London

$$\frac{\partial(\Lambda \vec{J_s})}{\partial t} = \vec{E} - \frac{1}{n_s^* q^*} \nabla \left(\frac{1}{2} \Lambda J_s^2\right).$$
(2.38)

A condutividade perfeita aparece quando se considera o último termo da equação 2.38 nulo.

Segunda equação de London

Pode-se obter a Segunda equação de London facilmente aplicando o rotacional na equação 2.35, segue

$$\nabla \times (\Lambda \vec{J_s}) = -\nabla \times \vec{A} = -\vec{B}.$$
(2.39)

Pode-se prever o comportamente de exclusão do campo magnético considerando o rotacional da Lei de Ampère $\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J_s}$, obtém-se

$$\nabla \times \nabla \times \vec{B} = \nabla \times \mu_0 \vec{J}_s, \qquad (2.40)$$

neste caso pode-se usar a identidade vetorial $\nabla \times \nabla \times vecB = \nabla(\nabla \cdot \vec{B}) - \nabla^2 \vec{B}$ considerando a Lei de Gauss para o campo magnético e aplicando sobre a equação 2.40, segue que

$$-\nabla^2 \vec{B} = \mu_0 \nabla \times \vec{J_s}.$$
 (2.41)

Por fim introduzindo 2.41 na Segunda equação de London 2.39 chega-se a

$$\nabla^2 \vec{B} = \frac{\mu_0 \vec{B}}{\Lambda} = \frac{1}{\lambda_L^2} \vec{B}, \qquad (2.42)$$

esta equação descreve o efeito Meissner-Ochsenfeld.

A Primeira equação de London mostra que a corrente não decai com o tempo no interior do supercondutor, uma vez que $\vec{E} = 0$ no interior do mesmo, contudo pode-se discutir melhor esse fenômeno considerando a esfera de Fermi para um metal normal, em T = 0 todos os estados sobre a esfera estão preenchidos, a origem da esfera é zero se a corrente no metal é zero.

Aplicando uma corrente finita (na direção x por simplicidade) a origem da esfera se desloca de δk_x . No caso dos metais normais os elétrons dissipam energia e retornam a superfície da esfera de Fermi com origem zero, eles fazem isso um a um, individualmente.

Considerando um supercondutor, neste caso a condução se dá através dos pares de Cooper, com elétrons de mesmo centro de massa e momentos opostos. Assim caso os elétrons interajam formando um par, um elétron volta para a esfera original, empurrando o outro para frente para a próxima esfera, ou seja, forma-se a impressão de que um se "sacrífica"para que o outro consiga avançar à próxima esfera, a corrente, por sua vez, não decai, o que caracteriza o fenômeno da supercondutividade.

Na equação 2.38 o termo $\frac{1}{n_s^* q^*} \nabla \left(\frac{1}{2} \Lambda J_s^2\right)$ pode ser negligenciado, caso em que reproduz a Primeira Lei de London obtida por princípios clássicos, pois

$$\left|\vec{E}\right| >> \left|\frac{1}{n_s^* q^*} \nabla(\frac{1}{2} \Lambda J_s^2)\right|. \tag{2.43}$$

Para tal considere-se que a supercorrente ocupa um variação de espacial l, tem-se que $\nabla \cdot \vec{J_s} \approx \vec{J_s}/l$. Então a condição de negligência pode ser reescrita como

$$\left|\vec{E}\right| >> \left|\vec{v}_{s}\right| \left|\frac{\Lambda \vec{J}_{s}}{l}\right|. \tag{2.44}$$

Da Segunda equação de London pode-se escrever

$$\left|\frac{\Lambda \vec{J}_s}{l}\right| \approx |\vec{B}|,\tag{2.45}$$

como resultado obtem-se a condição para negligenciar o termo $\frac{1}{n_s^* q^*} \nabla \left(\frac{1}{2} \Lambda J_s^2\right)$ da Primeira equação de London obtida pelo modelo quântico macroscópico utilizado que é

$$|\vec{E}| >> |\vec{v}_s||\vec{B}|.$$
 (2.46)

Hipótese consistente e compatível com a negligeciação realizada sobre a contribuição do campo magnético na força de Lorentz, quando comparada com a força elétrica.

A equação 2.42, deduzida da Segunda equação de London também revela mais informações sobre o comportamento dos supercondutores, por exemplo, um campo magnético B_z , paralelo ao eixo z, decai exponencialmente com x segundo $B_z(x) = B_{z,0}e^{-x/\lambda_L}$. Além disso aplicando a Lei da Ampère obtem-se que a densidade de supercorrente flui no eixo y e decai exponecialmente com x segundo $J_{s,y}(x) = \frac{B_{z,0}}{\mu_0\lambda_L}e^{-x/\lambda_L} = \frac{H_{z,0}}{\lambda_L}e^{-x/\lambda_L} = J_{s,y,0}e^{-x/\lambda_L}$.

A quantização do fluxo deduzida do modelo clássico da superconcutividade também pode ser deduzida do modelo quântico macroscópico utilizado. Portanto, segue que partindo da expressão 2.35 podemos escolher um contorno C no interior do supercondutor tal que²

$$\oint_C (\Lambda \vec{J_s}) \cdot \vec{dl} + \int_S \vec{B} \cdot \vec{dS} = \frac{h}{q^*} \oint_C \nabla \theta \cdot \vec{dl}.$$
(2.47)

A integral

$$\oint_C \nabla \theta \cdot \vec{dl} = \lim(\vec{r_2} \to \vec{r_1})[\theta(\vec{r_2}, t) - \theta(\vec{r_1}, t)] = 2\pi n, (2.48)$$

pois dada f função escalar

$$\int_{\vec{r_1}}^{\vec{r_2}} \nabla f \cdot \vec{dl} = f(\vec{r_2}, t) - f(\vec{r_1}, t)(2.49)$$

e considerando a função de onda do ensemble de elétrons supercondutores $\Psi(\vec{r},t) = \sqrt{n_s^*}e^{i(\theta_0+2\pi n)}$, tem-se que $\theta(\vec{r_2},t) - \theta(\vec{r_1},t) = 2\pi n$.

Assim tem-se que

$$\oint_C (\Lambda \vec{J_s}) \cdot \vec{dl} + \int_S \vec{B} \cdot \vec{dS} = \frac{n2\pi\hbar}{q^*} = n\Phi_0$$
(2.50)

onde

$$\Phi_0 = \frac{h}{q^*} = \frac{h}{2e} = 2,067833636.10^{-15} V.s \tag{2.51}$$

é o fluxóide ou quanta de fluxo.

²Usou-se o teorema de Stokes para $\oint_C \vec{A} \cdot \vec{dl} = \int_S (\nabla \times \vec{A}) \cdot \vec{dS} = \int_S \vec{B} \cdot dS$

Capítulo 3

O efeito Josephson

Neste Capítulo será discutido mais uma consequência do fato da supercondutividade ser um fenômeno de coerência. O efeito Josephson é observado se dois supercondutores são conectados fracamente através de um contato elétrico, este contato pode ser estabelecido de diferentes formas, por pontos ou contorno, por metal normal, isolantes ou um supercondutor mais fraco. Essas conexões entre os supercondutores são conhecidas como junções Josephson ou simplesmente junções fracas, em inglês *weak links* e costumeiramente abreviadas por WLs. Os pares de Cooper tunelam os WL gerando uma corrente de tunelamento, corrente Josephson, este tunelamente de pares de elétrons leva o nome de efeito Josephson.

Até 1962, acreditava-se que este fenômeno não poderia ser mensurável, pois num sistema de junção metal-isolante-metal a probabilidade de um elétron tunelar era muito pequena, da ordem de 10^{-4} , esperava-se que para um par Cooper tunelar, ou seja dois elétrons, a probalilidade seria menor ainda, da ordem de $(10^{-4})^2$. Neste mesmo ano, Brian Josephson (14) quebrou essa ideia comum, mostrando que a probabilidade de um par de Cooper tunelar é a mesma de um elétron simples. A razão disso é que não é possível considerar os elétrons de um par com funções de onda incoerentes. A sobreposição das funções de onda gera uma ligação de energia finita denominada **energia de acomplamento Josephson**.

Josephson disse, ao receber o Prêmio Nobel, que as pesquisas de Giaver (44; 45) e Nicol, Shapiro e Smith (46), além das teorias de Cohen, Falicov e Philips (47) a cerca do tunelamento supercondutor contribuíram para que ele formulasse suas ideias.

Em 1963, Philip Anderson e John Rowell (48) confirmaram experimentalmente a previsão de Josephson como sendo uma consequência direta da natureza quântica macroscópica do estado supercondutor.

3.1 Equações Josephson

Quando dois supercondutores S_L e S_R estão afastados por uma distância macroscópica e com fases independentes, se a separação for reduzida a algo em torno de $30\dot{A}$, quasipartículas fluirão de um lado para outro caracterizando um tunelamento eletrônico simples. Além disso, se a distância é novamente reduzida chegando a $10\dot{A}$, observa-se o tunelamento de pares de Cooper. Neste caso o sistema passa a se comportar como um supercondutor único, havendo uma correlação entre as fases e os graus de liberdade, e as funções de onda passam a não representa uma descrição adequada. Esse fenômeno ficou conhecido como supercondutividade fraca (48), pois os parâmetros críticos inerentes à classe dos supercondutores tem valores muito baixos, se comparados com os supercondutores envolvidos no sistema isoladamente. A teoria de Josephson define como se comporta esse sistema de acoplamento fraco entre supercondutores. As equações de Josephson podem ser obtidas por diferentes abordagens. Descrevemos a seguir uma formulação da primeira equação Josephson segundo a proposta de Feynman (49) e outra a partir do modelo quântico macroscópico descrito no capítulo 2. A segunda equação de Josephson será obtida a partir do modelo do capítulo 2.

3.1.1 Primeira equação de Josephson segundo Feynman

Considerando um sistema do tipo Supercondutor-Barreira-Supercondutor (SBS) com Ψ_L e Ψ_R sendo as respectivas funções de onda macroscópicas dos pares de Cooper no supercondutor do lado esquerdo e no do lado direito, respectivamente. Tem-se que

$$\langle L|L\rangle = |\Psi_L|^2 = n_{SL}^*(\vec{r},t) \tag{3.1}$$

$$\langle R|R\rangle = |\Psi_R|^2 = n_{SR}^*(\vec{r},t). \tag{3.2}$$

Considerando-se um acoplamento fraco entre os suspercondutores, podem existir estado sobrepostos do tipo

$$|\Psi\rangle = \Psi_R |R + \Psi_L|L, \qquad (3.3)$$

o sistema evolui no tempo segundo a equação de Schrodinger

$$i\hbar \frac{\partial |\Psi\rangle}{\partial t} = \hat{H} |\Psi\rangle. \qquad (3.4)$$



Figura 3.1: A Figura apresenta caracterização do acomplamento fraco entre os supercondutores, a funções de onda se sobrepõe formando um estado misto no interior da barreira. Reprodução da Ref. (50)

Na junção a função de onda de um ensemble num supercondutor existe em parte no outro, se sobrepondo com a função de onda do ensemble do outro supercondutor no interior da junção. Essa análise requer que o operador Halmitoniano \hat{H} no sistema em questão seja constituído de uma parte atuante sobre o estado dos pares no supercondutor do lado esquerdo, outra sobre o estado dos pares do supercondutor do lado direito e uma parte sobre o estado misto sobreposição das funções de onda na barreira. Assim

$$\hat{H} = \hat{H}_L + \hat{H}_R + \hat{H}_T \tag{3.5}$$

onde

$$\hat{H}_L = E_L \left| L \right\rangle \left\langle L \right| \tag{3.6}$$

$$\hat{H}_R = E_R \left| R \right\rangle \left\langle R \right| \tag{3.7}$$

$$\hat{H}_T = K[|L\rangle \langle R| + |R\rangle \langle L|].$$
(3.8)

Neste caso, na ausência de campos eletromagnéticos, K é um número real e pode ser entendido como a amplitude de acoplamento do sistema, correlacionada com a geometria da junção. Assim considerando a função de onda de cada ensemble supercondutor, a equação de Schrodinger para cada função de onda fica

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_L}{\partial t} = E_L \Psi_L + K \Psi_R \tag{3.9}$$

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_R}{\partial t} = E_R \Psi_R + K \Psi_L. \tag{3.10}$$

Se K é zero, essas duas equações descrevem estados de baixa energia para cada supercondutor, mas se há um acoplamento entre os dois lados por um amplitude K pode haver fugas de um lado para o outro. Neste caso supôs-se que as regiões supercondutoras estão conectadas ao terminais de um bateria criando uma diferença de potencial V através da junção. Então $E_L - E_R = qV$, por conveniência, pode-se definir o zero de energia como a média da energias, as duas equações assumem a forma

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_L}{\partial t} = \frac{qV}{2} \Psi_L + K \Psi_R \tag{3.11}$$

$$i\hbar\frac{\partial\Psi_R}{\partial t} = -\frac{qV}{2}\Psi_R + K\Psi_L. \tag{3.12}$$

De acordo com 2.21 pode-se escrever a função de onda para os ensembles de cada supercondutor como:

$$\Psi_L = \sqrt{n_{SL}^*} e^{i\theta_L} \tag{3.13}$$

$$\Psi_R = \sqrt{n_{SR}^*} e^{i\theta_R}.$$
(3.14)

Utilizando essas funções de onda nas equações de Schrodinger 3.11 e 3.12 pode-se, através da separação da parte real da imaginária e incluindo as relações de seno e cosseno da soma ou diferença da ângulos, encontrar o comportamento temporal da densidade de pares e da fase de cada ensemble, fazendo $\delta = \theta_L - \theta_R$, segue abaixo

$$n_{SL}^{\dot{*}} = +\frac{2}{\hbar} K \sqrt{n_{SL}^* n_{SR}^*} sin\delta \qquad (3.15)$$

$$n_{SR}^{i} = -\frac{2}{\hbar} K \sqrt{n_{SL}^* n_{SR}^*} sin\delta$$

$$(3.16)$$

$$\theta_L = +\frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_{SR}^*}{n_{SL}^*} cos\delta} - \frac{qV}{2\hbar}$$
(3.17)

$$\theta_R = +\frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_{SL}^*}{n_{SR}^*} cos\delta + \frac{qV}{2\hbar}}.$$
(3.18)

A corrente tunelando a barreira será

$$J = \frac{\partial n_{SL}^*}{\partial t} = -\frac{\partial n_{SR}^*}{\partial t} \tag{3.19}$$

$$J = +\frac{2}{\hbar} K \sqrt{n_{SL}^* n_{SR}^*} \sin \delta, \qquad (3.20)$$

e escrevendo $J_0 = \frac{2}{\hbar} K \sqrt{n_{SL}^* n_{SR}^*}$, obtem-se a equação para a corrente Josephson

$$J = J_0 \sin \delta. \tag{3.21}$$

3.2 Primeira equação de Josephson via modelo quântico macroscópico

Considere as funções de onda 3.13 e 3.14 para os ensembles de superelétrons nos supercondutores que conformam a junção. A densidade de supercorrente que atravessa a junção depende do gradiente de fase invariante de calibre

$$J_s = q^* n_s^*(\vec{r}, t) \frac{\hbar}{m^*} \left[\nabla \theta(\vec{r}, t) - \frac{2\pi}{\Phi_0} \vec{A}(\vec{r}, t) \right] = q^* n_s^*(\vec{r}, t) \frac{\hbar}{m^*} \vec{\gamma}(\vec{r}, t).$$
(3.22)

Serão consideradas as seguintes hipóteses:

 (i) No caso dos supercondutores serem fracamente acoplados e a área da junção ser pequena, pode-se considerar as densidades de corrente homogêneas;

(ii) Além disso a densidade de pares na borda da junção é muito menor que no interior dela, desta forma, o gradiente de fase $\vec{\gamma}$ varia muito pouco na região dos eletrodos da junção;

(iii) J_s é a mesma nos eletrodos e na área da junção.

Então pode-se substituir o gradiente de fase invariante de calibre $\vec{\vec{\gamma}}$ pela diferença de fase invariante de calibre

$$\delta(\vec{r},t) = \int_{1}^{2} \vec{\gamma}(\vec{r},t) \cdot dl = \int_{1}^{2} \left(\nabla \theta - \frac{2\pi}{\Phi_{0}} A \right) \cdot dl (3.23)$$
$$= \theta_{2}(\vec{r},t) - \theta_{1}(\vec{r},t) - \frac{2\pi}{\Phi_{0}} \int_{1}^{2} A(\vec{r},t) \cdot dl. (3.24)$$

Desta forma espera-se que $J_s = J_s(\delta)$ e, portanto, $J_s(\delta + n2\pi)$, além disso

 $J_s(0)=J_s(n2\pi)=0.$ Isso implica um $J_s(\delta)$ da forma

$$J_s(\delta) = J_0 \sin \delta + \sum_{m=2}^{\infty} J_m \sin(m\delta).$$
(3.25)

Esta é uma fórmula geral para a 1^{st} equação de Josephson: Relação de fase-corrente.

Na maioria dos casos o acoplamento é fraco e portanto apenas o primeiro termo sobrevive:

$$J_s(\delta) = J_0 \sin \delta, \tag{3.26}$$

ou seja, a expressão mais difundida para descrever a primeira equação de Josephson.

3.3 Segunda equação de Josephson

A derivada temporal da eq. 3.24 fornece:

$$\frac{\partial \delta}{\partial t} = \frac{\partial \theta_2}{\partial t} - \frac{\partial \theta_1}{\partial t} - \frac{2\pi}{\Phi_0} \frac{\partial}{\partial t} \int_1^2 \vec{A}(\vec{r}, t) \cdot \vec{dl}.$$
(3.27)

Substituindo a relação de energia-fase $-\hbar\frac{\partial\theta}{\partial t}=\frac{1}{2n_s^*}\Lambda J_s^2+q^*\phi$ tem-se

$$\frac{\partial\delta}{\partial t} = -\frac{1}{\hbar} \left(\frac{\Lambda}{2n_s^*} [J_s^2(2) - J_s^2(1)] + q^* [\phi(2) - \phi(1)] \right) - \frac{2\pi}{\Phi_0} \frac{\partial}{\partial t} \int_1^2 \vec{A} \cdot \vec{dl}. \quad (3.28)$$

A densidade de supercorrente deve ser contínua através da junção de maneira

que a eq. 3.28 se resume a

$$\frac{\partial \delta}{\partial t} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_1^2 \left(-\nabla \phi - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \right) \cdot \vec{dl}.$$
(3.29)

O termo em parentesis é o campo elétrico através da junção. A eq. 3.29 simplificada fica

$$\frac{\partial \delta}{\partial t} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_1^2 \vec{E}(\vec{r},t) \cdot \vec{dl}, \qquad (3.30)$$

conhecida por segunda equação de Josephson ou relação de fase-voltagem.

Para um diferença de potencial constante através da junção, δ é modelado por um função afim do tipo $\delta(t) = \delta_0 + \frac{2\pi}{\Phi_0} V t$.

3.4 Interferência quântica em junções sob campo magnético aplicado

A equação 3.24 mostra que a presença de um potencial vetor atuando na região do entorno da junção contribui para com a diferença de fase invariante de calibre. É necessário analisar a integral do pontencial vetor em torno da junção para que os efeitos da presença de campo magnético aplicado possam se contabilizados. A Figura 3.2 representa um junção simplificada.

Trata-se de um junção do tipo Supercondutor-Isolante-Supercondutor (SIS). A espessura da região isolante é d e $L \times W$ é área da junção que contem o vetor campo magnético $\vec{B} = (0, B_y, 0)$, assumimos $d \ll L$ e W. Em cada eletrodo o campo penetra um profundidade λ_L . Pode-se definir a espessura magnética efetiva da junção como $t_B = d + 2\lambda_L$.



Figura 3.2: Esquema representativo de um junção retangular do tipo SIS.

Considerando 2.35

$$\Lambda \vec{J_s} = -\left\{ \vec{A}(\vec{r},t) - \frac{\hbar}{q^*} \nabla \theta(\vec{r},t) \right\}$$
(3.31)

e a diferença de fase invariante de calibre através da barreira 3.24

$$\delta = \theta_2 - \theta_1 - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_1^2 \vec{A} \cdot \vec{dl}.$$
 (3.32)

e tomando a equação 3.32 atravessando os pontos M e G na Figura 3.3 tem-se

$$\theta_{M_1} - \theta_{M_2} = +\delta(M) + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{M_2}^{M_1} A \cdot dl, \qquad (3.33)$$

$$\theta_{G_2} - \theta_{G_1} = -\delta(G) + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{G_1}^{G_2} A \cdot dl.$$
(3.34)



Figura 3.3: Esquema 2D de uma junção Josephson retangular, o caminho fechado de integração passa pelos pontos M e G nos dois eletrodos.

A equação 3.31 fornece um caminho para que se calcule as diferenças em θ

das equações 3.33 e 3.34, segue que

$$\nabla \theta = \frac{2\pi}{\Phi_0} (\Lambda \vec{J_s} + \vec{A}), \qquad (3.35)$$

$$\int_{i}^{f} \nabla \theta \cdot dl = \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{i}^{f} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{i}^{f} \vec{A} \cdot \vec{dl}.$$
(3.36)

Assim sendo, tem-se

$$\theta_{G_1} - \theta_{M_1} = \int_{M_1}^{G_1} \nabla \theta \cdot \vec{dl} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{M_1}^{G_1} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{M_1}^{G_1} \vec{A} \cdot \vec{dl}, \qquad (3.37)$$

$$\theta_{M_2} - \theta_{G_2} = \int_{G_2}^{M_2} \nabla \theta \cdot \vec{dl} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{G_2}^{M_2} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{G_2}^{M_2} \vec{A} \cdot \vec{dl}.$$
(3.38)

Substituindo as equações 3.37, 3.38 em 3.33 + 3.34 obtem-se

$$\delta(M) - \delta(G) = -\frac{2\pi}{\Phi_0} \oint_C A \cdot d\vec{l} - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{M_1}^{G_1} \Lambda \vec{J_s} \cdot d\vec{l} - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{G_2}^{M_2} \Lambda \vec{J_s} \cdot d\vec{l}.$$
(3.39)

A integral de caminho no contorno fechado C fornece o fluxo Φ de campo magnético que atravessa a superfície formada pelo contorno. A integral da densidade de corrente pode ser desenvolvida como segue

$$\int_{M_1}^{G_1} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} = \int_{M_1}^{M_1'} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} + \int_{M_1'}^{G_1'} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} + \int_{G_1'}^{G_1} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl}, \qquad (3.40)$$

$$\int_{G_2}^{M_2} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} = \int_{G_2}^{G'_2} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} + \int_{G'_2}^{M'_2} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} + \int_{M'_2}^{M_2} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl}.$$
(3.41)

As integrais de caminho na direção z são nulas, pois supõe-se os cantos do contorno C a uma distância da junção sobre o eixo $x >> \lambda_L$, nesta região a corrente, que cai exponecialmente com a distância em relação a região de borda do grão, é nula. As integrais de caminho na direção x sobre as linhas que contém os pontos $G \in M$ quando somadas fornecem um resultado nulo, quando considera-se que a distância entre as referidas linhas é infinitesimal (dz), assim sendo as equações 3.40 e 3.41 se resumem a

$$\int_{M_1}^{M_1'} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} = -\int_{G_1'}^{G_1} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl}, \qquad (3.42)$$

$$\int_{G_2}^{G_2} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl} = -\int_{M_2'}^{M_2} \Lambda \vec{J_s} \cdot \vec{dl}.$$
(3.43)

Seguindo assim pode-se escrever a equação 3.44 como

$$\delta(M) - \delta(G) = \frac{2\pi\Phi}{\Phi_0}.$$
(3.44)

Pode-se perceber que a relação entre as fases invariantes de calibre se dá em função do fluxo de campo magnético em torno da junção, portanto fica evidente que se $B_y = 0$ não haverá diferença entre as fases. O fluxo de campo magnético nas junções e nos eletrodos das junções pode ser calculado segundo um aproximção de London, ou seja, um campo magnético $B_y = B_0 \exp\left(-\frac{x}{\lambda_L}\right)$ e será:

$$d\Phi = B_y(d + \lambda_{L1} + \lambda_{L2})dz = B_y t_B dz.$$
(3.45)

E 3.44 fica

$$\frac{\partial \delta}{\partial z} = -\frac{2\pi}{\Phi_0} B_y t_B. \tag{3.46}$$

Em geral para um campo $\vec{B} = (B_x, B_y, B_z)$ tem-se

$$\nabla\delta(\vec{r},t) = \frac{2\pi}{\Phi_0} t_B[\vec{B}(\vec{r},t) \times \hat{i}]. \tag{3.47}$$

Neste caso \hat{i} é o vetor unitário que indica a direção perpendicular ao plano formado pela área da junção, oposto ao fluxo da corrente considerado.

A integração de 3.46 fornece

$$\delta(z) = \frac{2\pi}{\Phi_0} B_y t_B z + \delta_0, \qquad (3.48)$$

para δ_0 sendo a diferença de fase para z = 0.

Usando a relação 3.48 na relação de fase-corrente 3.26 obtem-se a densidade de supercorrente

$$J_s(y,z,t) = J_0 \sin\left(\frac{2\pi}{\Phi_0} t_B B_y z + \delta_0\right) = J_0(y,z) \sin(kz + \delta_0),$$
(3.49)

onde $k = \frac{2\pi}{\Phi_0} t_B B_y$.

3.5 Corrente de tunelamento

A corrente total que atravessa a junção é

$$I = \int \int dz dy J_0(y,z) \sin\left(\frac{2\pi}{\Phi_0} t_B B_y z + \delta_0\right)$$
(3.50)

para a integral calculada sobre a área da junção.

Percebe-se que o formato da junção terá um papel predominante no perfil da corrente que tunela, todavia o argumento da função seno dentro da integral não depende de y, portanto é conveniente definir

$$\Im(z) = \int dy J_0(y, z). \tag{3.51}$$

Considerando uma junção como a da Figura 3.2, com a origem do referencial coincidindo com o ponto geométrico médio da junção, a expressão 3.50 pode ser reescrita como

$$I(k,\delta_0) = \int_{-L/2}^{L/2} dz \Im(z) \sin(kz + \delta_0), \qquad (3.52)$$

$$= Im \left\{ e^{i\delta_0} \int_{-L/2}^{L/2} dz \Im(z) e^{ikz} \right\}.$$
 (3.53)

A expressão 3.53 pode ser maximizada com respeito
a δ_0 fornecendo a corrente Josephson máxima

$$I_m(k) = \left| \int_{-L/2}^{L/2} dz \Im(z) e^{ikz} \right|.$$
(3.54)

Por conveniência pode-se calcular a integral acima entre $-\infty e + \infty$ assumindo que $\Im(z) = 0$ para |z| > L/2, isto é

$$I_m(k) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dz \Im(z) e^{ikz} \right|.$$
(3.55)

A integral 3.55 pode ser calculada tomando o caso de uma junção retangular como a representada na Figura 3.2, por conveniência considerar-se-a a região da barreira definida por $|z| \leq L/2$, $|y| \leq w/2$ e $|x| \leq d/2$. Assumindo

$$J_0(y,z) = J_0(z)p_{L/2}(z)$$
(3.56)

$$J_0(z) = J_0 = constante, \qquad (3.57)$$

onde

$$p_{L/2} = \begin{cases} 1 & |z| \le L/2; \\ 0 & |z| > L/2. \end{cases}$$

segue que

$$\Im(z) = \int_{-w/2}^{w/2} dy J_0(y, z), \qquad (3.58)$$

$$\Im(z) = J_0 w p_{L/2}(z). \tag{3.59}$$

Então

$$I_0(k) = \left| J_0 w \int_{-\infty}^{\infty} dz p_{L/2}(z) e^{ikz} \right|.$$
 (3.60)

A transformada de Fourier de $p_{L/2}$ será

$$\int_{-\infty}^{\infty} dz p_{L/2}(z) e^{ikz} =$$
(3.61)

$$\int_{L/2}^{L/2} \cos kz dz + i \int_{L/2}^{L/2} \sin kz dz =$$
(3.62)

$$\frac{2\sin k(L/2)}{k} \tag{3.63}$$

e a equação 3.60 se reduz a

$$I_0(k) = I_0 \left| \frac{\sin k(L/2)}{k(L/2)} \right|, \qquad (3.64)$$

onde, neste caso $I_0/L = J_0 w$.

É conveniente escrever a equação 3.64 em termos do fluxo de campo magnético em torno da junção, para isso deve-se retomar $k = \frac{2\pi}{\Phi_0} t_B B_y$ e fazer $\Phi = B_y t_B L$ como sendo o fluxo obtido segundo um aproximação de London para a penetração de campo magnético em torno da junção, obtendo:

$$I_0\left(\frac{\Phi}{\Phi_0}\right) = I_0 \left|\frac{\sin \pi \frac{\Phi}{\Phi_0}}{\pi \frac{\Phi}{\Phi_0}}\right|.$$
(3.65)

A equação 3.65 produz um Figura de Franhoufer¹ como mostrado na Figura 3.4.



Figura 3.4: Dependência teórica da corrente Josephson máxima I_0 em relação ao campo magnético para um junção Retangular.

 $^{^1\}mathrm{Em}$ analogia a Figura de difração de Franhoufer produzida por uma fenda. Este efeito foi registrado por Anderson e Rowell (48), em 1963, e posteriormente confirmado por vários pesquisadores.
Capítulo 4

Confecção e caracterização de amostras de Hg,Re-1223

4.1 Um breve descrição quanto à fabricação da amostra de Hg,Re-1223

A fim de se obter amostras com composições do tipo $Hg_{0,82}Re_{0,18}Ba_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$ primeiramente foram utilizadas reações sólidas a partir de precursores tratados termicamente. Nesta primeira parte, utilizou-se um mol do precursor $Ba_2Ca_2Cu_3O_{7,17}$ (Praxair-99,9%) e 0,18 moles de ReO_2 (Aldrich – 99%) que estavam em forma de pó e cuja mistura foi realizada em um morteiro de ágata. É importante ressaltar que a pesagem do pó foi realizada em uma caixa de luvas sob atmosfera de N_2 para que as quantidades de massas não sofressem absorção de umidade, causando com isso erros nos valores das massas nominais. Após a mistura, estes pós foram compactados a uma pressão de 0,5 GPa e em seguida foram tratados termicamente sob fluxo constante de oxigênio. As taxas das rampas de aquecimento e resfriamento empregados nos fornos foram de 300°C/h para todos os tratamentos realizados e os patamares de sintetização foram de 850°C, 900°C, 910°C e 900°C para o primeiro, segundo, terceiro e quarto tratamentos, respectivamente, com duração de 12 horas. Estabeleceu-se para o quinto, sexto e sétimo tratamentos o patamar de 900°C, onde o 5° tratamento durou 12 horas e o 6° e 7° tratamentos 24 horas.

A segunda parte da preparação das amostras consistiu em tratar termicamente, com diferentes concentrações de oxigênio, o precursor oriundo do sétimo tratamento. Esse precursor foi dividido em quatro partes e essas foram submetidas a um fluxo de gases misturados com proporções de oxigênio e argônio que variavam de 5%, 10%, 15% e 20% de Oxigênio com o complemento em Argônio, mantidos a 1 bar. A mistura de gases nas proporções citadas foi realizada em um misturador de fluxo da marca QuantaCrome. As amostras foram colocadas no forno que foi submetido a taxas de aquecimento e de resfriamento de 300° C/h sendo que as amostras permaneceram 24 horas no patamar de 850°C. Depois que os precursores foram devidamente tratados termicamente e analisados, foi possível produzir as amostras, através de reações sólidas, com composições do tipo $Hg_{0.82}Re_{0.18}Ba_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$ (Hg,Re-1223). Para obter a estequiometria desejada, utilizou-se um mol de precursor $Re_{0.18}Ba_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$ (Re-223) e 0,82 moles de HgO (Aldrich – 99%) que estavam em forma de pó e cuja mistura dos composto foi realizada em um morteiro de ágata. Como no caso da preparação dos precursores, a manipulação e pesagem do pó foram feitas em uma caixa de luvas sob atmosfera de N_2 evitando erros nos valores de massas nominais. O passo seguinte foi misturar o pó e compactar sob uma pressão de 0,5 GPa. Em seguida, as amostras foram enroladas em folhas de ouro e colocadas em tubos de quartzo que eram conectados a uma bomba de vácuo de duplo estágio. Depois de uma hora de bombeamento, o tubo de quartzo era lacrado e assim pôde-se garantir que não houve quebra da estequiometria e a não contaminação da amostra com CO_2 e H_2O . Depois disso, as amostras foram colocadas juntas no forno de pressão para a sintetização, sendo a taxa de aquecimento de 300°C/h até o patamar de 700°C e seguiu depois com uma taxa de 120°C/h até o patamar de 860°C onde permaneceu durante 72h. A taxa de resfriamento foi de 600°C/h até chegar a temperatura ambiente.

Com o procedimento descrito acima foram produzidas três amostras com estequiometrias de oxigênio diferentes, a saber Amostra A com 5% de Oxigênio, Amostra B com 10% de oxigênio e amostra C com 15% de Oxigênio.

Uma quarta amostra produzida com 20% de oxigênio apresentou inomogeneidades e foi descartada para este estudo.

4.2 Medidas de transporte $J_c(H)$

Para o procedimento básico da medida de transporte (resistividade elétrica e corrente crítica), as amostras, conformadas em paralelepípedos com dimensões típicas de $1 \times 7 \times 1 \text{ mm}^3$, são fixadas em um suporte de safira (porta-amostra, Figura 4.1) usando verniz GE. Quatro contatos, feitos com fios de ouro, são fixados sobre cada amostra através de tinta prata. A resistência média está em torno de $5 \pm 1\Omega$ para cada contato. O porta-amostra é inserido numa região de campo magnético gerado por uma bobina de comprimento 40 cm e diâmetro de 10 cm.



Figura 4.1: Amostra instalada no suporte de safira denominado porta-amostra, unidade de medida centímetro.

A corrente é aplicada por uma Fonte de Corrente da marca KEITHLEY modelo 228A (ver Figura 4.2) que injeta uma certa faixa de valores de corrente. Os valores de voltagem são obtidos por um nanovoltímetro digital da marca KEITH-LEY modelo 182. Para cada valor de corrente aplicada inverte-se o sentido da mesma a fim de evitar possíveis efeitos de contatos. A temperatura é medida com um termopar cobre-constantan que está fixado ao porta-amostra e conectado a um multímetro da marca HP modelo 34401A. Todos os dados são armazenados em um computador usando uma interface IEEE-488. Existem softwares específicos para aquisição de dados para as medidas de resistividade e corrente elétricas. O campo magnético gerado pela bobina é variado e a cada valor definido é medida a corrente crítica para aquele campo.



Figura 4.2: Aparato experimental para medidas de resistividade elétrica e corrente crítica.

4.3 Medidas de Susceptibilidade AC

As medidas de suscetibilidade realizadas em laboratório utilizam um método de avaliação de tensões em bobinas. Um esquema simplificado é apresentado na Figura 4.3.

A bobina externa indicada na Figura 4.3 gera um campo magnético alternado nas duas bobinas internas. Estas bobinas internas são iguais, entretanto uma é enrolada em sentido contrário ao da outra de modo que a diferença de potencial induzido V_B na segunda bobina seja igual, porém de sinal trocado a diferença de pontecial induzido V_A da primeira bobina. O dispositivo Lock-in (amplificador para medir sinais alternados de pequena intensidade, com detecção de fase e filtros finos de frequência) conectado às bobinas conforme a Figura 4.3 mede a diferença de potencial entre as bobinas internas. A diferença de potencial detectada no Lock-in deve ser nula.

No entanto, se um material com propriedades magnéticas for colocado dentro de uma das bobinas, a diferença de potencial detectada pelo Lock-in não será



Figura 4.3: Esquema simplificado do sistema utilizada para fazer as medidas de susceptibilidade em função da temperatura.

mais nula, pois o material altera a resposta da bobina à variação de fluxo.

A bobina externa gera um campo de indução dado por

$$H = H_0 \cos wt \tag{4.1}$$

desta forma a diferença de potencial induzida (em módulo) em uma das bobinas internas com área S de secção transversal, no vácuo, segundo a Lei de Faraday, será

$$V = -\frac{d\Phi}{dt} = -S\mu_0 \frac{dH}{dt} \tag{4.2}$$

$$V = Sw\mu_0 H_0 \sin wt. \tag{4.3}$$

Apesar de o campo gerado pelo bobina externa ter valor máximo $B_0 = \mu_0 H_0$, este valor irá diferir no interior de cada bobina interna, se em pelo menos uma delas existir um material magnético no seu interior. Essa diferença se dá em função da magnetização do material magnético em questão, de maneira que o campo magnético resultante no interior da bobina que contém material tomará em conta o campo gerado pela magnetização do mesmo. Assim têm-se o campo magnético máximo resultante no interior da bobina interna que contém um material magnético como

$$B_{r0} = \mu H_0 = \mu_0 (1 + \chi_m) H_0, \qquad (4.4)$$

onde χ_m é a susceptibilidade magnética do material magnético no interior da bobina.

Desta forma, considerando a diferença de potencial em cada bobina segundo

a equação 4.3têm-se

$$V_A = Aw\mu_A H_0 \sin wt, \tag{4.5}$$

$$V_B = Aw\mu_B H_0 \sin wt. \tag{4.6}$$

No caso em que a bobina A contém um material magnético, $\mu_A = \mu_0(1 + \chi_m)$ e $\mu_B = \mu_0$, e assim pode-se obter χ_m fazendo

$$V_{lock-in} = V_A - V_B = Aw(\mu_A - \mu_B)\sin wt,$$
(4.7)

e dividindo por V_B têm-se

$$\frac{V_{lock-in}}{V_B} = \frac{Aw(\mu_A - \mu_B)\sin wt}{Aw\mu_B H_0\sin wt} = \frac{\mu_A - \mu_B}{\mu_B},$$
(4.8)

 ${\it finalmente}$

$$\frac{V_{lock-in}}{V_B} = \frac{\mu_0(1+\chi_m) - \mu_0}{\mu_0},\tag{4.9}$$

$$\chi_m = \frac{V_{lock-in}}{V_B}.\tag{4.10}$$

Capítulo 5

Modelagem de $J_c(H)$ em bulks cerâmicos supercondutores

Os supercondutores policristalinos são formados por inúmeros grãos, de formas e tamanhos diferentes, não orientados. Quando amostras são sintetizadas na forma de pastilhas ou filmes espesso (51) elas apresentam inúmeras regiões de contato intergranular, conhecidas como Junções. Essas regiões podem ser isolantes ou supercondutoras com propriedades mais fracas que as do interior dos grãos. A Figura 5.1 representa um diagrama de Voronoi, que numa primeira aproximação representa essa ideia de conexão entre grãos.

Essas junções tem papel predominante sobre os fenômenos de transporte de carga e propagação do calor em amostras policristalinas. Especificamente no que diz respeito a transporte de carga elétrica, o mecanismo de tunelamento de Josephson é determinante na densidade de corrente que transpõe a barreira, mesmo a potencial zero.

A corrente crítica de uma amostra supercondutora policristalina de alta tem-



Figura 5.1: Morfogia estrututal de uma cerâmica policristalina aproximada por um Diagrama de Voronoi.

peratura crítica é governada pelo mecanismo Josephson de transporte de carga nas junções entre os grãos da amostra. Isso é uma consequência das limitações impostas pelas junções sobre a corrente que passa de um grão para outro. Mais especificamente, se a corrente crítica medida para uma amostra policristalina tem um determinado valor sob influência de um determinado campo magnético $\mu_0 H$, esse valor, com certeza, será o valor da corrente média que está sendo transportada pelas junções da amostra.

A partir da Figura 5.1 pode-se considerar uma diferença de potencial alimentando uma corrente que percola a amostra a fim de atravessá-la. A densidade de corrente que entra na amostra por um lado é transportada para o outro lado da amostra. Porém, para que isso ocorra é necessário que a densidade de corrente que passa pelas junções seja a mesma da de entrada. Na presença de campo magnético, algumas dessas junções reduzem sua capacidade de transporte, densidade de corrente, a uma dada intensidade, porém outras diminuem menos. Portanto, tomando a média ponderada da densidade de corrente transportada pelas junções obtêm-se a densidade total de corrente transportada pela amostra.

Para o caso em que as junções presentes na amostra são do tipo retangular, semelhante à Figura 3.2, quando se considera t_b um valor médio constante, fica claro que L passa a determinar o comportamento das junções. Isso se deve ao fato de que o fluxo de junção para junção se comportará de maneira diferente em função do único parâmetro relevante L. Matematicamente, pode-se descrever esse comportamento da seguinte maneira

$$J_c(H) = \sum^n P(n)J_n(H) \tag{5.1}$$

$$J_{c}(H) = \sum^{n} P(n) \frac{J(0)\phi_{0}}{\pi\mu_{0}HL_{n}t} \left| \sin\left(\frac{\pi\mu_{0}HL_{n}t}{\phi_{0}}\right) \right|.$$
 (5.2)

onde P(n) representa a razão entre o número médio de junções com tamanho L_n presentes na amostra e o número total de junções da amostra. Trata-se, portanto, de uma função peso, para o cálculo da média ponderada, onde $\sum_n P(n) = 1$.

Simulações computacionais sobre o comportamento da densidade de corrente crítica foram desenvolvidas utilizando dados reais considerando um intervalo de junções baseado nas medidas de susceptibilidade, que serão apresentadas no capítulo 7, e tendo como parâmetros de entrada tamanho mínimo $L_{mn} = 185$ nm e tamanho máximo $L_{mx} = 5550$ nm para as junções presentes na amostra analisada. Para essa estimativa utilizou-se o valor de $t_B \approx 782$ nm, considerando o $\lambda_{ab}(121.5K) = 390$ nm e $d \approx 2$ nm, o que apresentou boa concordância com o valor disponível na literatura (52; 53). A Figura 5.2 mostra a corrente crítica resultante obtida através da expressão 5.2 para distribuições P(n) diferentes, uma simétrica, com P(n) constante, e outra assimétrica. Neste caso, n = 4, considerando apenas 4 tamanhos L de junções presentes na amostra, e n = 30, considerando 30 tamanhos L de junções. Além disso, a curva pontilhada considera uma amostra em que todas as junções são iguais possuindo L = 2700 nm, tamanho idêntico ao médio das junções da amostra de Hg,Re - 1223 estudada. Comparou-se estes resultados com os dados medido para $J_c(H)$ da amostra em análise.

A distribuição P(n), que foi usada na modelagem da corrente crítica, revela que quando do incremento de 4 para 30 tamanhos possíveis para L, a curva resultante passa a apresentar menor oscilação. Isso indica que a continuidade da distribuição tem relação direta com a continuidade da curva resultante. Portanto amostras cuja distribuição de valores L apresentam maior dispersão, ou seja, variada ocorrência de tamanhos distintos, tendem a fornecer uma curva de corrente crítica que converge para uma curva contínua, com primeiras e segundas derivadas contínuas. Há de se considerar que todas as tentativas de modelagem já realizadas propõem distribuições de tamanhos de L contínuas (32; 35; 36), ou seja, a curva modelada por tais trabalhos não captura totalmente as oscilações da curva real, pois a curva real é baseada numa distribuição não contínua de tamanhos.

Ainda na Figura 5.2 pode-se obsevar que a junção média apresenta forte influência sobre o comportamento da corrente crítica até valores próximos de seu primeiro mínimo. A partir deste ponto é notado que as outras junções passam a ter papel mais relevante. É possível perceber que as junções com L > 2700nm passam a ser majoritárias no transporte de corrente, pois essas junções ainda não atingiram o seu primeiro mínimo, ou zero. É notória a influência da junção média sobre a curva de $J_c(H)$ da amostra, quando um zero da curva pontilhada é atingido, a curva experimental apresenta uma forte pressão negativa sobre o seu valor concomitantemente. Isso se repete sistematicamente. Além disso, para campos magnéticos aplicados maiores que o campo de primeiro mínimo da junção média, é observado que os máximos da curva da junção média são sucessivamente cada vez maiores que o valor de corrente crítica macroscópica medida para a amostra. Isso indica que algum processo não contabilizado na modelagem das junções está sendo desprezado e fica evidente que este processo é ativado quase que continuamente a medida em que o campo magnético aumenta.



Figura 5.2: $J_c(H)$ 121.5K para n = 4 e n = 30. Em ambos os casos, nós apresentamos as curvas com P(n) simétrico e assimétrico, a curva pontilhada representa a simulação para uma amostra ideal com $L_n = \text{constante}$.

Capítulo 6

A Susceptibilidade Magnética e a distribuição de tamanhos *L* das junções no supercondutor Hg,Re-1223

6.1 Susceptibilidade magnética versus H

As bordas dos grãos, que formam as junções em amostras cerâmicas, são regiões que apresentam estequiometria diversa das regiões intragranulares. Essas regiões apresentam muito mais defeitos estruturais que a região intragranular, portanto também possuem propriedades supercondutoras diferentes das do interior do grão. No caso do supercondutor HgRe - 1223, esses parâmetros foram estudados em detalhes, sendo que além da morfologia e composição, essas junções foram classificadas como isolantes (40). Além de correntes de blindagem intragranulares, uma amostra supercondutora policristalina na presença de campo magnético aplicado apresentará correntes de blindagem intergranulares, se existirem junções entre grãos. Essas correntes são representadas na Figura 6.1.



Figura 6.1: Representação esquemática das correntes de blindagem intergranular.

A Figura 6.2 apresenta resultados obtidos para a parte real da susceptibilidade em função do campo aplicado para uma amostra em pastilha do supercondutor Hg,Re - 1223. Sabe-se que amostras sintetizadas em pastilhas apresentam um degrau a mais na susceptibilidade em função da maior eficiência de blindagem por conta das correntes intergranulares presentes (54). Estas medidas foram obtidas a 77 K e indicam o primeiro campo crítico do grão (H_{c1}^g) em 40 mT.

A eficiência da blindagem magnética, por conta das correntes intergranulares, é inversamente proporcional ao campo magnético aplicado. Portanto espera-se que a intensidade máxima dessas correntes seja limitado em função do fluxo magnético em torno das junções que transportam tais correntes. Ao transpor um barreira essas correntes de blindagem, por serem governadas pelo mecanismo



Figura 6.2: Gráfico da parte real da susceptibilidade AC versus $\mu_0 H$ numa amostra supercondutora em pastilha da cerâmica Hg,Re-1223 a 10% PO₂ em 77 K.

Josephson de transporte, obedecem um padrão de difração tipo Franhoufer na presença de campo aplicado (55). Portanto seu comportamento segue, para a nossa amostra, a expressão

$$J(\mu_0 H) = \frac{J(0)\phi_0}{\pi\phi} \left| \sin\left(\frac{\pi\phi}{\phi_0}\right) \right|,\tag{6.1}$$

onde ϕ é fluxo de campo magnético em torno da junção e $\phi_0 = 2,0678.10^{-15}$ Wb o quantum de fluxo.

A expressão 6.1 nos mostra que a medida que aumentamos o campo magnético aplicado, menor é corrente que passa pela junção. Consequentemente, uma vez definido um circuito de blindagem conforme a Figura 6.1 mostra, se a corrente que passa pelas junções é reduzida, a eficiência da blindagem magnética também será reduzida, o que, consequentemente, diminui o módulo de χ' . Este efeito da redução da corrente que passa as junções com o incremento do campo magnético é o responsável pela perda de eficiência na blindagem magnética da amostra ceramica policristalina.

6.2 Distribuição de tamanhos *L* de junção na amostra

A amostra ceramica policristalina de HgRe-1223 analisada aqui apresenta junções com morfologia retangular semelhante ao que é apresentado na Figura 3.2, onde L representa o tamanho da junção, perpendicular ao campo, e d a espessura isolante da junção, perpendicular ao campo e ao tamanho da junção.

A corrente que passa através dessa junção se comporta segundo o padrão Franhoufer descrito na expressão 6.1. O fluxo magnético calculado em torno da junção será, numa aproximação de London,

$$\phi = \mu_0 H L (d + 2\lambda_{ab}). \tag{6.2}$$

Inserindo 6.2 em 6.1 obtém-se

$$J(\mu_0 H) = \frac{J(0)\phi_0}{\pi\mu_0 H L(d+2\lambda_{ab})} \left| \sin\left(\frac{\pi\mu_0 H L(d+2\lambda_{ab})}{\phi_0}\right) \right|.$$
 (6.3)

Considerando que essa espessura magnética da junção $t_b = d + 2\lambda_{ab}$ varia muito pouco de junção para junção, visto que λ_{ab} e d também variam muito pouco, a expressão 6.3 indica que, para um mesmo campo magnético aplicado, junções com tamanhos L diferentes apresentaram comportamento de máximos e mínimos diferentes. Isso pode ser observado na Figura 6.3, onde obtemos o comportamento de junções com tamanhos diferentes, numa mesma faixa de variação de campo magnético aplicado. É importante lembrar que J(0) depende da densidade de portadores de carga presentes nas junções e do acomplamento entre as fases das funções de ondas do ensembles de superelétrons no supercondutores que formam uma junção. No caso estudado aqui, esses parâmetros (densidade de portadores e acoplamento de fases) variam muito pouco de grão para grão, visto que os grãos são todos de um mesmo supercondutor, podendo somente variar, muito pouco, em função de defeitos específicos não gerais para a amostra.



Figura 6.3: Simulação do comportamento de $J_c(H)$ numa junção retangular com $t_b(0,77K) = 372$ nm.

Para essas simulações utilizou-se $t_b = 372$ nm à 77K, onde d foi assumido como da ordem de 2 nm e λ_{ab} aproximadamente 185 nm (52). O tamanho médio



Figura 6.4: Simulação do comportamento de $J_c(H)$ numa junção retangular com $t_b(0,77K) = 372$ nm para obter os tamanhos máximos e mínimos das junções da amostra Hg,Re-1223 através do diagrama de $\chi'(H)$.

das junções, medido através da técnica de SEM para a amostra de Hg,Re-1223 analisada, foi de 2700 nm (40).

Pode-se observar através da Figura 6.3 que junções com comprimento L pequeno tem seu primeiro ponto de zero de corrente associado a fluxos magnéticos mais elevados. De forma contrária, junções com L de maior comprimento tem seu primeiro ponto de zero de corrente associado com menores valores de campo magnético aplicado. O comportamento apresentado na Figura 6.2 se deve ao fato de que para cada valor de campo um certo número de junções atingem seu primeiro mínimo. Esse comportamento faz com que as correntes de blindagem que passam por essas junções tendam a zero, consequentemente contribuindo para com a diminuição do módulo de χ' . A expressão 6.1 descreve que o parâmetro relevante neste modelo é o fluxo de campo magnético. Considerando o campo magnético fixo, o fluxo magnético será definido pelo produto de t_b e L, ou seja, uma área efetiva de fluxo em torno da junção, A_{eff} . As junções que possuem mesma área efetiva de fluxo, A_{eff} , tem seus mínimos coincidindo para um mesmo valor de campo magnético sucessivamente.

Pode-se estimar o tamanho das junções que estão atingindo seu primeiro zero para um determinado campo, caso consideremos t_b como um valor médio fixo. A Figura 6.4 indica o tamanhos máximo e mínimo das junções que compõem a amostra de HgRe-1223 submetida às medidas de susceptibilidade. Verifica-se que para que a amostra se comporte conforme apresentado na Figura 6.2 é necessário ter junções com tamanhos L variando entre 185 nm e 5550 nm.

Uma análise mais aprofundada da Figura 6.4 indica que para um valor específico de campo magnético tem-se somente um número definido de junções com mesma A_{eff} que podem atingir seu zero de corrente. Portanto, pode-se concluir que quanto maior for o número de junções com determinada área A_{eff} , maior será a contribuição desse tipo de junção para a variação de χ' para um determinado valor de campo magnético. Mais ainda, analisando a questão sob outro ponto, é possível interpretar que a derivada de primeira ordem da susceptibilidade magnética χ' em relação ao campo magnético aplicado, deve fornecer uma boa aproximação para o tipo de distribuição de áreas A_{eff} das junções presentes na amostra em análise. Essa curva é apresentada na Figura 6.5 e pode ser associada a uma distribuição do tipo Gamma. Assumindo t_b como um valor invariante em média de junção para junção, a diferença de A_{eff} de junção para junção esta associada a L, ou seja, a distribuição Gamma proposta é oriunda da distribuição de L da amostra. Em resumo, o tamanho L da junções pode ser descrito estatisticamente segundo uma distribuição do tipo Gamma, como já proposto empiricamente na literatura (40).



Figura 6.5: O gráfico da derivada de primeira ordem de $\chi'(H)$ com respeito a H obtido a partir das medidas apresentadas na Figura 6.2.

Abre-se um parênteses para chamar atenção entre a similaridade da interpretação proposta para bulks poliscristalinos com a mesma construção extendida para filmes espessos. Sem qualquer perda de generalidade, a construção morfológica e estrutural das junções é praticamente a mesma. No caso de filmes espessos a associação é quase imediata, basta comparar a Figura 5.1 com imagens SEM disponíveis na literatura (51).

Capítulo 7

$J_c(H)$ em supercondutores policristalinos

7.1 Descrição teórica

Como foi descrito na seção 6.2, na amostra HgRe-1223 estudada, observa-se um comportamento de variação no tamanho L da junção que pode ser associado a uma distribuição do tipo Gamma (40). Assumindo um valor médio para a espessura isolante t_b de cada junção pode-se contabilizar a contribuição de cada junção frente a corrente total da amostra utilizando a distribuição estatística Gamma para o tamanho L, como segue:

$$P(L) = \frac{L^{m-1} \exp\left(-L/\eta\right)}{\eta^m (m-1)!}.$$
(7.1)

m, inteiro, e η , racional, são os parâmetros de forma e escala, respectivamente, ambos adimensionais e positivos, que ajustam a distribuição. O produto entre eles fornece o tamanho médi
o< L >das junções da amostra.

A corrente crítica da amostra (J_c) será dada pela média estatística das correntes Josephson em cada junção segundo a distribuição (7.1),

$$J_{c}(H) = J_{c0} \int_{0}^{\infty} P(L) \left| \frac{\sin(\pi \phi/\phi_{0})}{\pi \phi/\phi_{0}} \right| dL.$$
(7.2)

L aparece como parâmetro da função ϕ .

Resolvendo a integral 7.2 obtém-se uma expressão para a corrente crítica de amostras policristalinas

$$J_{c}(H) = \frac{J_{c0}\alpha^{m}}{(m-1)!} (-1)^{m} \frac{\partial^{m-2}}{\partial \alpha^{m-2}} \left[\frac{\coth(\alpha/2)}{\alpha^{2} + \pi^{2}} \right].$$
 (7.3)

A variável α , com dimensão de comprimento, foi inserida por conveniência matemática e absorve a dependência da corrente em relação ao campo magnético aplicado,

$$\alpha = \frac{\phi_0 L}{\phi \eta}.\tag{7.4}$$

Retomando a proposta de Peterson e Ekin (32), considerou-se uma aproximação de London para a penetração do campo magnético aplicado no interior dos grãos para um fluxo na qual desprezou-se a contribuição dos vórtices formados ou em formação no interior dos grãos, pois neste caso considerou-se a situação na qual o campo aplicado é menor que $\mu_0 H_{c1}^g$.

Neste caso o campo é atenuado exponencialmente segundo uma profundidade de penetração London, λ . Como a amostra de Hg,Re-1223 apresenta junções intragranulares do tipo isolante, o campo magnético aplicado as penetra uniformemente sem sofrer qualquer blindagem magnética na região com espessura d. O fluxo total ϕ , é calculado facilmente segundo princípios básicos de teoria eletromagnética, sendo

$$\phi = \mu_0 H L (d+2\lambda). \tag{7.5}$$

Inserindo o fluxo total obtido pela aproximação de London (7.5) na expressão que descreve α (7.4), obtém-se uma descrição mais detalhada do parâmetro α que é utilizado na expressão (7.4), sendo

$$\alpha = \frac{\phi_0}{t_b \eta \mu_0 H},\tag{7.6}$$

onde $t_b(T) = d + 2\lambda(T)$ representa a espessura magnética média das junções numa determinada temperatura.

7.2 Modelagem estatística de $J_c(H)$

Utilizou-se a expressão 7.3 com o fluxo obtido segundo aproximação de London (equação 6.2) para ajustar os dados de $J_c(H)$ obtidos para a amostra. O modelo descrito na equação (7.3) apresenta dependência dos parâmetros m, $\eta \in t_b(T)$ referentes às características da amostra, sendo que existe um vínculo qua caracteriza a amostra tal que o produto $m.\eta = 2700$ nm, valor referente ao tamanho médio das junções obtidos no trabalho (40). Essa condição limita os possíveis valores de $m \in \eta$, mais precisamente de η , uma vez que m deve ser inteiro (mdefine a ordem da derivada parcial que aparece na expressão 7.3).

Descreve-se a seguir um exemplo do procedimento adotado para ajustar o modelo teórico aos dados experimentais. Utilizando 15 combinações de $m \in \eta$ construiu-se várias curvas teóricas distintas de $J_c(H)$ associadas aos valores usados de $t_b(T)$. Para cada curva construída a partir de valores definidos de $m, \eta \in t_b(T)$ foi obtido um erro em relação à curva experimental. O erro considera a soma absoluta das diferenças, ponto a ponto, entre a curva teórica e a curva experimental. O melhor ajuste foi aquele que apresentou menor erro associado. A Figura 7.1 mostra o ajuste que apresentou o menor erro, tendo $m = 7, \eta = 0.3857e - 06$ e $t_b(121.5K) = 782$ nm. O modelo utilizando a aproximação de London mostrou ser coerente, pois a amostra foi submetida a campos com intensidade menores que $\mu_0 H_{cg}^1(121.5K) = 4,2mT$. O ajuste forneceu bons resultados, considerando o caso de campos magnéticos aplicados de até 1,0 mT. Neste caso percebemos que a proposta de Peterson e Ekin, com a distribuição Gamma, se mostra adequada.



Figura 7.1: Modelagem da curva experimental de $J_c(H)$ a temperatura de 121.5 K, com m = 7, $\eta = 0.3857e - 06$ e $t_b(121.5K) = 782$ nm

A espessura do filme isolante que forma a junção foi obtida a partir do valor de $t_b(121.5K) = 782$ nm oriundo da melhor curva ajustada. Portanto, utilizando $\lambda(T) = \lambda_{ab}(121.5K) = 390$ nm (52) para a amostra analisada (40) obtêm-se d = 2 nm. Para campos maiores que 1,0 mT, observa-se uma não concordância entre a curva ajustada e o comportamento experimental. A modelagem que foi proposta até aqui, em sua concepção simples, não mostra incoerências matemáticas ou conceituais. O entendimento foi de que algum dos parâmetros usados neste modelo simples possui graus de liberdade em relação ao campo magnético aplicado que não foram considerados até então. Sendo assim, analisando os ajustes para campos menores que o primeiro campo crítico do grão e considerando outros trabalhos desenvolvidos pelo grupo (42), percebeu-se que era necessário incrementar o modelo considerando a borda dos grãos como sendo formada por um supercondutor com propriedades mais fracas que o supercondutor do interior do grão. Como consequência desta modelagem mais elaborada, verificou-se que um fluxo adicional de campo magnético deverá ser considerado dentro dessa região em torno da junção. Neste caso, a espessura magnética da junção deveria aumentar, quando o primeiro campo crítico da borda do grão fosse alcançado.

Levando em consideração esse incremento na proposta do modelo entende-se que o campo de 1,0 mT indicaria o primeiro campo crítico da borda dos grãos que compõem um grupo razoavelmente grande de junções, a qual seria suficiente para provocar uma variação considerável na espessura magnética média das junções que compõem a amostra.

A intensidade do campo magnético $\mu_0 H = 1.0 \text{ mT}$ à 121.5 K está associado ao primeiro campo crítico das bordas da junções $\mu_0 H_{c1}^b$, indicado em trabalhos anteriores (54). A proposta de interpretação dos resultados indica que num primeiro momento a mundança gerada na susceptiblidade magnética AC (observada na Figura 6.2) devido à presença de campo magnético aplicado é causada pelo decréscimo de densidade de corrente intergranular experimentado pelas junções, segundo o padrão Franhoufer descrito anteriormente. Isso explica porque a intensidade da susceptibilidade magnética AC é reduzida, como descrito na seção 6.2. Além disso, como proposto, existe a superposição do efeito da entrada de vórtices nas bordas dos grãos que compõem as junções devido à transição dessa faixa supercondutora mais fraca (bordas) para o estado misto.

Com base nessa interpretação, uma previsão do primeiro campo crítico associado à borda do grão a 77 K foi calculada segundo a relação

$$\mu_0 H_{c1}^b(T) = \mu_0 H_{c1}^b(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c}\right) \right], \qquad (7.7)$$

onde os valores de $\mu_0 H_{c1}^b(0K) = 13,78$ mT e $\mu_0 H_{c1}^b(77K) = 5,68$ mT foram obtidos.

A intensidade do campo magnético $\mu_0 H_{c1}^b(77K)$ está indicado como uma linha no gráfico 7.2. Para campos menores que 5.68 mT a distribuição similar Gamma observada descreve exclusivamente a dependência da susceptibilidade magnética AC em relação ao tamanho L das junções, considerando t_b constante. Para campos maiores que 5.68 mT, nota-se uma mudança no comportamento da curva. Nesse ponto parece ocorrer uma pequena translação de uma distribuição Gamma, indicando a influência do aumento da espessura magnética média das junções, t_b , em função da penetração de vórtices no interior das bordas do grão em torno das junções. Como a Figura 7.2 apresenta uma simetria semelhante a uma distribuição Gamma esperada para A_{eff} , é possível que a mudança no comportamento observada seja fruto da variação de t_b . Não há indícios de uma mudança nos parâmetros intrínsecos associados à distribuição Gamma de L.



Figura 7.2: Diagrama de $\partial \chi'(H)/\partial H$ indicando H_{c1}^b . Para campos menores que H_{c1}^b a susceptibilidade responde somente por conta da distribuição de tamanhos L. Para campos maiores que H_{c1}^b a susceptibilidade é influenciada para entrada de vórtices nas bordas dos grãos.

7.3 Singularidade matemática do modelo ($\alpha = \pi/2$)

Um estudo analítico já realizado da expressão 7.3 indicou a existência de uma singularidade matemática na expressão para $\alpha = \pi/2$ (37). Verificou-se que existe um ponto de mudança brusca do regime de comportamento da corrente crítica presente em sistemas com tamanho de junções descritos por uma distribuição do tipo Gamma. É possível que este ponto indique uma condição de singularidade da maioria da Figuras de difração de Franhoufer associadas a tamanhos de junção próximos ao tamanho médio da distribuição. Existe uma grande probabilidade de coincidência dos zeros de corrente gerados pela difração de Fraunhofer da maiori parte das junções presentes na amostra policristalina. Após esse ponto, a maioria das junções reduz seu valor de corrente transpostada através da junção de forma significativa, pois a maioria delas já teriam passado pelo seu primeiro zero. No

modelo aqui proposto entende-se que existe um campo magnético característico para o qual a maioria das junções apresentam um mínimo no padrão de difração de Franhoufer, gerando com isto uma singulariedade do modelo.

Pode-se realizar uma estimativa do campo magnético para o qual a maioria das junções atingem seu mínimo simultaneamente, $\mu_0 H_0$, fazendo $\alpha = \pi/2$ na expressão 7.6, assim

$$\mu_0 H_0(T) = \frac{2\phi_0}{\pi \eta t_b(0,T)},\tag{7.8}$$

para $t_b(0,121.5K) = 782$ nm, com $\eta = 0.3857e - 06$, obtêm-se $\mu_0 H_0(121.5K) = 4.36$ mT.

O valor de $\mu_0 H_0$ é influenciado por T, em virtude do t_b . A 77K, onde $t_b(0,77K) = 372$ nm, obtêm-se o valor de aproximadamente $\mu_0 H_0(77K) = 9$ mT. A Figura 6.5, que fornece a distribuição de tamanhos das junções da amostra estudada, mostra claramente que a 77 K e com um campo magnético aplicado de 9 mT, a grande maioria das junções já atingiram seu primeiro zero, o que corrobora esta proposta.

Capítulo 8

Modelo estatístico de $J_c(H)$ corrigido para amostras cerâmicas policristalinas de Hg,Re-1223

8.1 Melhorias no modelo estatístico de corrente crítica

Medidas de EDS já efetuadas nas amostras estudadas confirmam que o contorno do grão tem composição diferente da que é observada no interior do grão (42). Em geral essas bordas são deficientes em oxigênio, o que influência negativamente nas propriedades supercondutoras tais como o campo crítico. Neste caso, a borda do grão supercondutor passa a apresentar um campo crítico mais fraco que o interior do grão. Essa realidade influencia o comportamento das junções de maneira que, ao atingir o primeiro campo crítico na borda do grão desse supercondutor (mais fraco) fluxóides surgem no interior dessa borda apenas. A Figura 8.1 mostra esquematicamente esse conceito. Tomando essa imagem como ilustração, entende-se que haverá um efeito direto sobre o fluxo magnético em torno da junção, aumentando o valor do mesmo. O aumento do fluxo implica na redução da corrente máxima transportada pela junção e no adiantamento dos zeros da Figura de Franhoufer para a junção em questão. Esse comportamento explica porque as curva teóricas apresentadas nas Figuras 7.1 e 5.2 não coincidem com as curvas experimentais a partir de 1.0 mT. Rotulou-se esse campo, de 1.0 mT, como sendo o primeiro campo crítico da borda, H_{c1}^b .

O diamagnetismo do estado supercondutor é oriundo de correntes. Portanto uma parte do comportamento da susceptibilidade magnética χ' e de sua primeira derivada $\partial \chi' / \partial H$ tem uma dependência direta com t_B e as correntes intergrãos. A falta de concordância entre modelos anteriores propostos e o comportamento da corrente crítica medida experimentalmente, da forma como foi apresentada no capítulo 7 a partir de 1.0 mT, se justifica por não se considerar o contorno do grão nos modelos propostos. Deve-se considerar as bordas dos grãos supercondutores como regiões mais fracas que as do inteiro do grão.

A transcrição matemática dessa interpretação se dá considerando que, para uma determinada intensidade de campo magnético, os contornos de grãos ou junções com mesmas características tem o seu primeiro campo crítico característico diferente do interior do grão. A medida que se incrementa o campo magnético aplicado, atingi-se o primeiro campo crítico de um outro grupo de junções ou contorno de grão, e em seguida de outro, e outro, e assim sucessivamente. Em termos de comportamento médio, t_B varia quase que continuamente com o incremento do campo. Desta forma, é proposto aqui uma correção para o modelo



Figura 8.1: Desenho esquemático da penetração do campo magnético aplicado à junção e grão, (a) campos menores e (b) campos maiores que H_{c1}^b .

descrito no Capítulo 7 que consiste em assumir que $t_B = t_B(H,T)$ depende de Hatravés de uma lei de potências

$$t_B(H,T) = t_B(0,T) + \Delta t_B(H,T),$$
(8.1)

$$d(H) + 2\lambda(T) = d(0) + 2\lambda(T) + \Delta t_B(H,T),$$
(8.2)

$$\Delta t_B(H,T) = \Delta d(H), \qquad (8.3)$$

propõe-se

$$\Delta d(H) = \Delta t_B(H,T) = t_B(0,T) \left(\frac{H}{H^*(T)}\right)^w,$$
(8.4)

então

$$t_B(H,T) = t_B(0,T) \left[1 + \left(\frac{H}{H^*(T)}\right)^w \right],$$
 (8.5)

onde $\mu_0 H^*$ é o campo magnético médio e w um número real positivo.

A comparação da curva experimental com o modelo de corrente crítica corrigido, ou seja, considerando um $t_B(H,T)$ é apresentado na Figura 8.2. Todos os parâmetros utilizados nas modelagens apresentadas anteriormente foram mantindos na simulação do modelo corrigido. Verifica-se que a única diferença se dá pela inserção de valores para $w \in H^*$. Neste caso buscou-se valores de $w \in H^*$ que se ajustam ao comportamento da curva experimental. Calculou-se o erro atribuído à curva corrigida para os valores de $w \in H^*$ utilizados a partir da norma do vetor que carregava os dados teóricos subtraído do vetor que carregava os dados medidos. Os ajustes que apresentavam erro próximo foram analisados manualmente a fim de que a curva teórica acompanhasse os dados experimentais além de apresentar menor erro. Obteve-se um bom ajuste para $w = 3/2 \in \mu_0 H^* = 4.36$ mT. Pode ser visto claramente que em comparação à curva não corrigida, a inserção de uma dependência de H em t_B corrige o comportamento dos modelos até agora utilizados.



Figura 8.2: Modelagem de $J_c(H)$ com o modelo corrigido para $t_B = t_B(H, 121.5K)$ comparada com a curva do modelo não corrigido. $m.\eta = 2700$ nm e $t_B(0, 121.5K) = 782$ nm. Utilizou-se $\mu_0 H^*(121.5K) = 4.36$ mT.

Capítulo 9

Caracterização da Energia de *Pinning*

A amostra otimamente dopada em oxigênio (amostra B) apresenta uma típica dependência do campo magnético aplicado para a transição resistiva, sendo que esse comportamento é apresentado na Figura 9.1.

Pode ser visto que existe um regime linear na cauda resistiva. Um comportamento similar é encontrado nas outras duas amostras (sobdopada e sobredopada). Como foi reportado por Palstra *et al.* (56) and Batista-Leyva *et al.* (57), pode-se ajustar todas as curvas usando a Lei de Arrhenius:

$$\rho(H,T) = \rho_0 \exp\left[-\frac{U(H,T)}{k_B T}\right]$$
(9.1)

onde k_B é a constante de Boltzmann e a energia de Pinning pode ser expressa como

$$U(H,T) = U(H) \left(1 - \frac{T}{T_{co}}\right)^{\beta}.$$
(9.2)



Figura 9.1: Medidas de resistividade elétrica AC com diferentes campos magnéticos aplicados. A linha pontilhada representa a região onde foi feito o ajuste de Arrhenius na amostra otimamente dopada. Na legenda é mostrada quais campos foram usados. A linha sólida representa o ajuste linear.
O gráfico para o ajuste de Arrhenius apresenta um comportamento linear na região indicada entre as linhas pontilhadas na Figura 9.1. Este regime linear implica em $\beta = 1$ para regiões de baixo campo magnético (58; 59; 60). Então, a energia de *Pinning* pode ser determinada pelo ajuste linear do *plot* de Arrehenius,

$$ln\frac{\rho}{\rho_0} = -\left[\frac{U(H)}{k_B}\right]\frac{1}{T} + \frac{U(H)}{k_B T_{co}}.$$
(9.3)

Tomando em conta o último ajuste, pode-se montar a Figura 9.2 onde é mostrado a dependência da energia de *Pinning* como uma função do campo magnético aplicado. Em todos os casos, os dados experimentais podem ser ajustados por um relação funcional

$$U(H) = \zeta H^{-n}.\tag{9.4}$$

A Figura 9.2 apresenta o comportamento geral da energia de *Pinning* para três amostras. Na faixa de temperatura a qual os dados foram obtidos, entre 120 K e T_c , pode-se sugerir a existência de duas regiões com diferentes comportamentos. O primeiro é região intergrão e é associado a campos magnéticos menores que 8 $\times 10^3$ A/m (≈ 10 mT). O segundo é a região intragrão e está relacionado com campos magnético aplicados maiores que 8 $\times 10^3$ A/m.

A energia de *Pinning* mostra um mudança de comportamento para valores maiores que 8×10^3 A/m, porque a partir deste valor o campo magnético entra na região maciça do grão supercondutor. No intervalo de $2 < H_{app} < 10$ mT o campo magnético penetra a região intergrão. Esta interpretação está em concordância com Sin *et al.* (54), a qual indica $H_{c1}^j \approx 2$ mT a 77 K. Para campos magnéticos acima de 8×10^3 A/m a energia de *Pinning* é relacionada com as propriedades do *bulk* (região maciça do grão, intragrão) e não é tão sensível à variação de campo magnético, quando considera-se que o campo de penetração dentro dos grãos é ${\rm H}^g_{c1}\approx 50~{\rm mT~a~77~K}.$

A amostra B (otimamente dopada) apresentou o maior valor para energia de Pinning a 32×10^3 A/m (≈ 40 mT), como pode ser visto no lado direito da Figura 9.2.



Figura 9.2: A energia de *Pinning* como uma função do campo magnético aplicado para amostras de Hg,Re-1223 com diferentes concentrações de oxigênio.

A diferença entre as curvas para campos magnéticos aplicados maiores que 8 $\times 10^3$ A/m vem das característica da região maciça e da microestrutura do grão, determinados por analise EDS em trabalhos anteriores (61). Como mostrado na Tabela 9.1, a amostra B apresenta menor variação de estequiometria do grão e

Tabela 9.1: Composição das amostras obtida por medidas de EDS. O valor $\langle d \rangle$ é o tamanho médio de junção dos grãos obtido pela análise das imagens SEM (61).

Amostra	Grain center	Grain board	$< d > (\mu m)$
А	$Hg_{0.83}Re_{0.17} - 223$	$Hg_{0.78}Re_{0.22} - 223$	2.1
В	$Hg_{0.80}Re_{0.20} - 223$	$Hg_{0.82}Re_{0.18} - 223$	2.7
С	$Hg_{0.79}Re_{0.21} - 223$	$Hg_{0.83}Re_{0.17} - 223$	2.4

Tabela 9.2: Parâmetros obtidos por um ajuste linear da região intregrão.

Parâmetros	Amostra A	Amostra B	Amostra C
n	1.11	0.75	0.83
ζ	4.00	2.70	3.01

maior valor de tamanho médio de junção entre grãos. Além disso, foi observado que a amostra B apresenta fases impuras segregadas (HgCaO₂ e BaCuO_{2+x}). Estes defeitos na amostra B ocorrem em pontos específicos com localização bem estreita, como comparação com as outras duas amostras A e C (61). Seguindo esse ponto de vista, a amostra B apresenta menor número de defeitos no centro do grão, porém este defeitos são mais localizadas, o que corresponde a mais alta energia de *Pinning*.

Os parâmetros ζ e n obtidos por meio de um ajuste linear da Eq. (9.4) apenas na região intergrão são apresentados na Tabela 9.2.

9.1 Análise da Corrente Crítica

A dependência da densidade de corrente crítica (J_c) com a temperatura reduzida $(t = T/T_c^*)$ é mostrada na Figura 9.3. Estas medidas foram realizadas sem campo magnético aplicado. A comparação relativa entre as três amostras mostra que J_c

é sensível a dopagem de oxigênio. A amostra B (otimamente dopada) apresentou o maior valor de J_c a baixa temperatura, que está relacionada com o tamanho médio de junção (ver Tabela 9.1). Por outro lado, pode-se observar a queda do valor de corrente crítica com o aumento da temperatura.



Figura 9.3: A densidade de corrente crítica dependente de $t = T/T_c^*$ para amostras Hg,Re-1223 com diferentes teores de oxigênio. Estas medidas foram realizadas sem campo magnético aplicado.

Na Figura 9.4 foram construídas curvas da densidade de corrente crítica normalizada $J_c/J_c(0)$ como função da temperatura reduzida t. $J_c(0)$ representa a densidade de corrente crítica extrapolada a T = 0 K e T_c^* é a temperatura crítica intergrão. Ambos T_c^* e $J_c(0)$ foram determinados ajustando uma lei de potência com os dados (62). Este T_c^* é a temperatura para o estabelecimento de espalhamento de correntes entre os grãos da cerâmica (nas junção Josephson). Esta interpretação está de acordo com os resultados apresentados por Sin *et al.* (54).



Figura 9.4: Densidade de corrente crítica normalizada $(J_c/J_c(0))$ como uma função de temperatura reduzida $t = T/T_c^*$. A linha do traço representa o ajuste para a teoria Ambegaokar-Baratoff.

O comportamento de J_c pode ser analisado pela teoria Ambegaokar e Baratoff. A partir deste quadro, J_c pode ser montado pela seguinte expressão (68; 69)

$$J_c = \frac{\pi}{2eR_NS}\Delta(T)tanh\left[\frac{\Delta(T)}{2k_BT}\right]$$
(9.5)

onde $\Delta(T) \approx 1.74 \Delta_0 (1 - T/T_c^*)^{1/2}$ é o parâmetro gap supercondutor a partir da teoria BCS. R_N é a resistência da junção no estado normal, S é a secção trans-

Amostra	T_c^*	$J_c(0)(imes 10^5 \ { m A/m^2})$	$S (\times 10^{-6} m^2)$
A	130 ± 1	7.7 ± 0.2	0.9 ± 0.3
В	128 ± 1	10.1 ± 0.6	1.2 ± 0.6
С	129 ± 1	1.2 ± 0.2	3.7 ± 0.9

Tabela 9.3: Os valores de densidade de corrente crítica $J_c(0)$ a T = 0 K e temperatura crítica T_c^* , onde começa dissipação de corrente entre os grãos.

versal de uma junção, $e \in k_B$ são carga do elétron e a constante de Boltzmann, respectivamente. Para temperatura relativamente perto de T_c , podemos supor a condição $\Delta(T) \ll k_B T$ e a $\tanh[\Delta(T)/2k_B T] \approx \Delta(T)/2k_B T$. Tendo isto em conta, a Eq. (9.5) é transformada em (63)

$$J_c \approx \frac{\pi}{4eR_NS} \Delta_0^2 \left[1 - \frac{T}{T_c^*} \right].$$
(9.6)

A fim de investigar as características de junção, modelou-se todas as amostras como feitas por uma matriz cúbica simples de grãos com dimensões idênticas r_g (S= r_g^2). Os valores estimados para S encontram-se resumidos na Tabela 9.3. Além disso, o valor estimado para gap supercondutor à temperatura zero é $\Delta_0 = 0.020$ dado pela aproximação BCS.

No âmbito da teoria Ambegaokar e Baratoff, pode-se, então, sugerir que as amostras analisadas apresentaram junções do tipo supercondutor-isolantesupercondutor (SIS), considerando-se a faixa de temperatura perto de T_c . Isto sugere que o mecanismo de transporte é o mesmo nas amostras independentes da pressão parcial de oxigénio utilizado no precursor. Por outro lado, a amostra C apresentou vestígio de impureza HgCaO₂ em diferentes zonas, incluindo a borda do grão supercondutor, de acordo com as análises de microscopia eletrônica (61).

Capítulo 10

Modelo de corrente crítica para compostos policristalinos com uma solução sólida de duas fases supercondutoras

Considerando o material apresentado até aqui, pode-se sumarizar a evolução do estudo de junções como sendo iniciado pelos pesquisadores pioneiros na modelagem de $J_c(H)$ em amostras cerâmicas supercondutoras policristalinas como sendo Peterson e Ekin (32). A influência da história magnética no comportamento de $J_c(H)$ foi introduzida (33; 34). Mezzeti et al. (35) que tentaram ligar as propriedades da família supercondutor do *bulk* com a distribuição do tamanho das junções de modo que a modelagem foi expandida analiticamente para qualquer valor de campo magnético aplicado. Gonzalez et al. (36) demonstrou que era possível usar uma distribuição tipo Gamma para modelar os tamanhos de junções, L, obtendo uma expressão para $J_c(H)$ dependendente dos parâmetros de forma e escala da distribuição Gamma. Todas as propostas foram consideradas para cerâmicas policristalinas cujas junções são SIS (Superconductor - Isolante -Superconductor) ou SNS (Superconductor - Normal - Superconductor).

Considerando trabalhos prévios (32; 36; 37; 38; 39) em que foi utilizado o modelo de junção SIS, uma melhoria do modelo de densidade de corrente crítica é proposto aqui, considerando o modelo junção $S_1S_2IS_2S_1$ para descrever as junções intergrãos de compostos com uma mistura de duas fases supercondutoras. A mistura é ilustrada aqui pelas junções presentes no composto policristalino de Hg,Re-1223. O *bulk* policristalino Hg, Re-1223 apresenta uma única solução sólida não homogênea de duas fases supercondutoras mistas, Hg-1223 e Hg,Re-1223 (40; 41). As junções entre os grãos aqui propostas foram modeladas como $S_1S_2IS_2S_1$, em que 1 representa a solução sólida rica em Hg,Re-1223 e fase 2 representa a solução sólida rica em Hg-1223 (41). A borda de cada grão no composto policristalino rotulado como Hg,Re-1223 sob a forma de *bulk* mostra uma solução sólida com alto teor de Hg-1223 de fase (42).

No caso simplificado de uma junção SIS para compostos policristalinos homogêneos, t_B foi assumido como uma constante a uma dada temperatura (32; 35; 36; 37). No entanto, no caso de compostos policristalinos com duas regiões supercondutores, onde a região 1 é a parte maciça do grão e a região 2 abrange a fronteira do grão, o modelo de junção SIS é alterada pela proposta de modelo de junção $S_1S_2IS_2S_1$, como pode ser visto na Figura 10.1. Classificamos t_B como

$$t_{B} = \begin{cases} t_{B}(0,T) = \text{constante} & SIS \text{ Ref. } (32; 35; 36; 37) \\ t_{B}(H,T) = t_{B}(0,T)f(H) & S_{1}S_{2}IS_{2}S_{1} \text{ neste trabalho.} \end{cases}$$

O composto policristalino de Hg,Re-1223 é um caso representativo de solução sólida não homogénea composta por uma fase de Hg-1223 e uma fase de Hg, Re-1223 (41). A fronteira de cada grão (S_2) apresenta uma solução sólida com um elevado teor de Hg-1223 (42). A região em massa apresenta uma solução sólida com um baixo teor de Hg-1223 (42). A região supercondutor S_2 tem um campo crítico menor do que a região S_1 . Quando a borda dos grãos alcança o primeiro campo crítico, as junções apresentam fluxo magnético maior, em comparação com junções modeladas pelo modelo de SIS porque não há entrada de vórtices nas bordas dos grãos.

Neste cenário para duas fases mistas na região S_2 (número intrínseco de fases k = 2), propõe-se considerar para o modelo $S_1S_2IS_2S_1$

$$f(H) = \left[1 + \left(\frac{H}{H^*(T)}\right)^{kn}\right],\tag{10.1}$$

em que n é o parâmetro ajustado pela relação funcional para a energia Pinning (42), $U(H) \propto H^{-n}$, e

$$\mu_0 H^* = \frac{\phi_0}{\eta t_B(0,T)\pi/2},\tag{10.2}$$

o qual foi obtido a partir da eq. (7.6), with $\alpha = \pi/2$, é um campo caracterísitco de cerâmicas policristalinas associado com a mudança do regim de J_c (37).

A energia de *Pinning* pode ser relacionada com a composição morfologia na



Figura 10.1: Desenho esquemático de dois tipos de junção, o SIS e o proposto $S_1S_2IS_2S_1$ para os compostos policristalinos com uma mistura de duas fases supercondutores.



Figura 10.2: Modelagem de $J_c(H)$ para a amostra A, com m = 5, $\eta = 0.42 \times 10^{-6}$ e $t_B(0,121.5K) = 782$ nm. Usou-se $\mu_0 H^*(121.5K) = 4.01$ mT e n = 1.11 para a modelagem com o modelo de junção $S_1 S_2 I S_2 S_1$.

região de fronteira intergrãos quando um campo magnético de baixa intensidade é aplicado para $T \approx T_c$ (64).

Utilizou-se o modelo estatístico de $J_c(H)$ para se ajustar os dados experimentais de corrente crítica do *bulk* supercondutor Hg,Re-1223. Este modelo de $J_c(H)$ no Hg,Re-1223 considera que as junções são caracterizadas por $S_1S_2IS_2S_1$.

A Figuras 10.2, 10.3 e 10.4 mostram a comporação entre os dados experimentais do Hg,Re-1223 com os ajustes teóricos para o modelo de junção SIS e o modelo de junção $S_1S_2IS_2S_1$, ajustados para três amostras (A, B, and C) na qual os precursores foram preparados com diferentes pressões parciais de oxigênio e argônio (PO_2 de 5% para a amostra A, PO_2 de 10% para a amostra B e PO_2 de 15% para a amostra C) (65; 66).



Figura 10.3: Modelagem de $J_c(H)$ para a amostra B, com m = 7, $\eta = 0.3857 \times 10^{-6}$ e $t_B(0,121.5K) = 782$ nm. Usou-se $\mu_0 H^*(121.5K) = 4.4$ mT e n = 0.75 para a modelagem com o modelo de junção $S_1 S_2 I S_2 S_1$.



Figura 10.4: Modelagem de $J_c(H)$ para a amostra C, com m = 6, $\eta = 0.4 \times 10^{-6}$ e $t_B(0,121.5K) = 782$ nm. Usou-se $\mu_0 H^*(121.5K) = 4.2$ mT e n = 0.83 para a modelagem com o modelo de junção $S_1 S_2 I S_2 S_1$.

Tabela 10.1: Parâmetros $m \in \eta$ da distribuição Gamma usada na modelagem de $J_c(H)$ com o modelo de junção SIS.

Amostra	А	В	С
m	5	7	6
η	0.42×10^{-6}	0.3857×10^{-6}	0.4×10^{-6}
$< L > (\operatorname{Ref.}(42))$	$2.1 \ \mu { m m}$	$2.7 \ \mu { m m}$	$2.4 \ \mu \mathrm{m}$

Tabela 10.2: Parâmetros $\mu_0 H^*(T)$ e *n* usados na modelagem de $J_c(H)$ com o modelo de junção $S_1 S_2 I S_2 S_1$.

Amostra	А	В	С
$\mu_0 H^*(121K)$	4.01 mT	4.4 mT	4.2 mT
n ($\operatorname{Ref.}(42)$)	1.11	0.75	0.83

Para as simulações computacionais, usou-se $t_B(0,121K) = 782$ nm, com $\lambda(121K) = 390$ nm (52) e d = 2 nm. Na simulação do modelo SIS para amostras Hg,Re-1223, obteve-se os melhores ajustes para os parâmetros $m \in \eta$ da Tabela 10.1.

O produto de $m \in \eta$ fornece o tamanho médio $\langle L \rangle$ das junções presentes nas amostras analisadas, sendo compatível com valoes típicos (40).

Nas simulações do modelo com a junção tipo $S_1S_2IS_2S_1$, usou-se os valores de $\mu_0H^*(121K)$ (obtido da equação 10.2 e *n* obtido a partir da energia de *Pinning* (42)) apresentados na Tabela 10.2.

As Figuras 10.2, 10.3 e 10.4 mostram que para $\mu_0 H > 1.0$ mT, o modelo de junção $S_1 S_2 I S_2 S_1$ apresenta melhores ajustes, quando comporado com a modelagem com modelo de junção SIS, usando os mesmos valores para $m \in \eta$ nas simulações.

Capítulo 11

Conclusões

Este trabalho propõe um aprimoramento do modelo que descreve a densidade de corrente crítica, considerando o modelo junção $S_1S_2IS_2S_1$ para descrever as junções intergrãos de compostos com uma mistura intrínseca de duas fases supercondutoras.

Esta investigação mostrou que a curva de susceptibilidade magnética AC indica como é o comportamento das junções nos supercondutores cerâmicos de Hg,Re-1223 policristalinos. Visando aplicações tecnológicas, associou-se esse comportamento à curva de corrente crítica versus campo magnético aplicado. Considerando essa associação foram obtidos valores para um parâmetro muito importante no controle da corrente crítica de cerâmicas policristalinas, que é denominado como H_{c1}^b . Este estudo mostrou que para campos maiores que H_{c1}^b o campo magnético médio nas junções é maior que o previsto nos modelos que desprezam a transição precoce das bordas dos grãos. Quando permitem a formação de vórtices, as bordas contribuem para o aumento do alcance do campo magnético na região do em torno das junções, sendo que isso é mensurado no incremento da espessura magnética média das junções t_B . Considerando uma composição química das bordas que varia para cada junção, descreveu-se no modelo corrigido uma transição precoce das bordas que se processa em grupos, de maneira que para cada valor de campo magnético aplicado um grupo específico de junções que tem um valor específico para o primeiro campo crítico de suas bordas permite a entrada de vórtices, uma correlação de dependência entre t_B e H foi descrita através de uma função contínua.

A derivada em primeira ordem $\partial \chi' / \partial H$ fornece o tipo da distribuição de tamanhos de junção na amostra e indica que t_B é diretamente proporcional a H. O sucesso na modelagem teórica de $J_c(H)$ depende da inserção de um $t_B(H,T)$ na teoria.

Esta proposta de correção dos modelos teóricos de J_c com a inserção de $t_B(H,T)$ considerou uma correlação entre t_B e H expressa através de uma lei de potências descrita, e confirmada, através da expressão 10.1. O campo médio $\mu_0 H^*$ é curiosamente igual ao campo $\mu_0 H_0$ de singularidade das multiplas difrações de Fraunhofer, o que indica uma simultânea ocorrência de mínimos para as todas as junções da amostra.

Considerando trabalhos prévios (32; 36; 37; 38; 39) em que foi utilizado o modelo de junção SIS, uma melhoria do modelo de densidade de corrente crítica é proposto aqui, considerando o modelo junção $S_1S_2IS_2S_1$ para descrever as junções intergrãos de compostos com uma mistura intrínseca de duas fases supercondutoras. A mistura é ilustrada aqui pelas junções presentes no composto policristalino de Hg,Re-1223. O *bulk* policristalino Hg, Re-1223 apresenta uma única intrínseca solução sólida não homogênea de duas fases supercondutoras mistas, Hg-1223 e Hg,Re-1223 (40; 41). As junções entre os grãos aqui propostas foram modeladas como $S_1S_2IS_2S_1$, em que 1 representa a solução sólida rica em Hg,Re-1223 e fase 2 representa a solução sólida rica em Hg-1223 (41). A borda de cada grão no composto policristalino rotulado como Hg,Re-1223 sob a forma de *bulk* mostra uma solução sólida com alto teor de Hg-1223 de fase (42).

No caso simplificado de uma junção SIS para compostos policristalinos homogêneos, t_B foi assumido como uma constante a uma dada temperatura (32; 35; 36; 37). No entanto, para o caso das nossas amostras que são compostos policristalinos com duas regiões supercondutores, onde a região 1 é a parte maciça do grão e a região 2 abrange a fronteira do grão, o modelo de junção SIS é alterada pela proposta de modelo de junção $S_1S_2IS_2S_1$, como pôde ser visto na Figura 10.1.

De acordo com a análise dos ajustes utilizando os dois modelos de junção com o modelo estatístico de $J_c(H)$ (37), os modelos de junção SIS e $S_1S_2IS_2S_1$ oferecem uma boa concordância com os dados experimentais para campos menores que 1.0 mT. Contudo, para campos maiores que 1.0 mT, apenas o modelo de junção $S_1S_2IS_2S_1$ apresenta um bom ajuste entre a previsão teórica de $J_c(H)$ e os dados do composto policristalino Hg,Re-1223 com uma intrínseca mistura de duas fases supercondutoras.

Nos sugerimos que no caso de composto policristalinos com uma densidade $\geq 90\%$ e na qual existe uma solução sólida não homogênea de duas fases supercondutoras (com no composto Hg,Re-1223), o modelo de junção $S_1S_2IS_2S_1$ proposto aqui oferece uma melhor descrição do comportamento das junções e por seguinte de $J_c(H)$.

Como sugestão de continuidade, propomos novos estudos em amostras do tipo Bi-1223 e Tl-1223. Entendemos que esses sistemas apresentarão mesmo comportamento.

Referências Bibliográficas

- [1] J. J. Thomson, Nobel Lectures, **1** (1906) 145.
- [2] P. Drude, Annalen der Physik, **1** (1900) 566.
- [3] P. Drude, Annalen der Physik, **3** (1900) 369.
- [4] N. W. Ashcroft and N. David Mermin, Física do Estado Sólido, Cengage Learning, 1ed, São Paulo (2011).
- [5] R. Eisberg and R. Resnick, Física Quântica, Elsevier, 21ed, Rio de Janeiro (1979).
- [6] H. K. Onnes, Nobel Lectures, **1** (1913) 306.
- [7] Site: http://wwwp.fc.unesp.br/rafael/historico_upercondutividade.htm(acessoem25/03/20
- [9] F. London and H. London, Proc. Roy. Soc., 141 (1935) 71.
- [10] C. J. Gorter and H. B. Casimir, Physica, **1** (1934) 306.
- [11] V. L. Ginzburg and L. Landau, Zh. Eksp. Teor. Fiz, **20** (1950) 1064.
- [12] L. N. Cooper, Phys. Rev., **104** (1956) 1189.
- [13] J. Bardeen, L. N. Cooper and J. R. Schrieffer, Phys. Rev., 108 (1957) 1175.

- [14] B. D. Josephson, Physics Letters, **1** (1962) 251.
- [15] B. T. Matthias, Phy. Rev., 82 (1973) 874.
- [16] R. Chevrel *et al.*, Journal Solid State Chem., **3** (1971) 515.
- [17] A. W. Sleight *et al.*, Solid State Communications, **17** (1975) 27.
- [18] T. D. Than *et al.*, Appl. Phys., **22** (1980) 205.
- [19] C. Michel adn B. Raveu, Chem. Min. Miner., **21** (1984) 407.
- [20] J. G. Berdnorz and K. A. Muller, Phys. B, **64** (1986) 189.
- [21] M. K. Wu et al., Phys. Rev. Lett., 58 (1987) 908.
- [22] Z. Z. Sheng and A. M. Hermann, Nature, **332** (1988) 55.
- [23] S. N. Putilin *et al.*, Nature, **362** (1993) 226.
- [24] A. Schilling *et al.*, Nature, **363** (1993) 56.
- [25] C. W. Chu *et al.*, Nature, **365** (1993) 323.
- [26] Z. Hirou *et al.*, Nature, **364** (1993) 315.
- [27] H. Shaked *et al.*, Phys. Rev. B, **51** (1995) 11784.
- [28] F. Steglich *et al.*, Phys. Rev. Lett., **43** (1979) 1892.
- [29] D. Jérome *et al.*, J. Phys. Lett. **41** (1980) L95.
- [30] A. F. Hebard *et al.*, Nature, **350** (1991) 600.
- [31] Y. Kamihara *et al.*, J. Am. Chem. Soc., **128** (2006) 10012.

- [32] R. L. Peterson and J. W. Ekin, Phys. Rev. B, **37** (1988) 9848.
- [33] E. Altshuler *et al.*, Phys. Rev. B, **60** (1999) 3673.
- [34] K. H. Muller and D. N. Matthews, Phys. C, **206** (1993) 275.
- [35] E. Mezzetti *et al.*, Phys. Rev. B, **60** (1999) 7623.
- [36] J. L. Gonzalez *et al.*, Physica C, **364** (2001) 347.
- [37] C. A. C. Passos *et al.*, Physica B, **404** (2009) 3123.
- [38] N.A. Boglyubov, Phys. C, **470** (2010) 361.
- [39] N.A. Boglyubov, Phys. C, **478** (2012) 1.
- [40] C. A. C Passos et al., Phys. Rev. B, **74** (2006) 094514.
- [41] F. H. S. Eleutério et al., J. Supercond. Nov. Magn., 27 (2014) 2679.
- [42] C. A. C. Passos *et al.*, Physica C, **419** (2005) 25.
- [43] R. Walther-Meissner Institute, Gross, Notas de aula do curso "Física temperaturas", publicado. Site: de de baixas não http://www.wmi.badw.de/teaching/Lecturenotes/index.html (acesso em20/02/2013).
- [44] I. Giaver, Phys. Rev. Lett., 5 (1960) 147.
- [45] I. Giaver, Phys. Rev. Lett., **5** (1960) 464.
- [46] J. Nicol, S. Shapiro and P. H. Smith, Phys. Rev. Lett., 5 (1960) 461.
- [47] M. H. Cohen, L. M. Falicov and J. C. Phillips, Phys. Rev. Lett., 8 (1962) 316.

- [48] P. W. Anderson and J. M. Rowell, Phys. Rev. Lett., **10** (1963) 230.
- [49] R. Feynman, R. B. Leigthon and M. Sands. In the Feynman's Lectures on Physics. Vol II, Addison-Wesley, 1965, chap. 21.
- [50] A. Barone and G. Patern, Small Junctions in a Magnetic Field, Wiley, 2ed, pp. 69-95, 2005.
- [51] M. Schilling *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys., **47** (2014) 034008.
- [52] C. Panagopoulos *et al.*, Phys. Rev. Lett., **79** (1997) 2320.
- [53] D. Eyidi *et al.*, Phys. Stat. Sol., **202** (2005) 1909.
- [54] A. Sin *et al.*, Physica C, **328** (1999) 80.
- [55] C. A. C. Passos et al. Superconductors (Rijeka: INTECH) (2012) 377-394.
- [56] T. T. M. Palstra *et al.*, Phys. Rev. Lett., **61** (1988) 1662.
- [57] A. Batista-Leyva et al., Physica C, **314** (1999) 73.
- [58] A. Batista-Leyva et al., Physica C, **383** (2003) 365.
- [59] L. E. Flores *et al.*, Cryogenics, **36** (1996) 705.
- [60] A. Batista-Leyva et al., Supercond. Sci. Technol., 16 (2003) 857.
- [61] C. A. C. Passos et al., Supercond. Sci. Technol., 15 (2002) 1177.
- [62] A. A. R. Fernandes *et al.*, Appl. Phys. Lett., **10** (1992) 3181.
- [63] J. L. Gonzalez *et al.*, Solid. Stat. Commun., **123** (2002) 405.

- [64] A. Sin et al., Supercond. Sci. Technol., 12 (1999) 120.
- [65] M. T. D. Orlando et al., Supercons. Sci. Technol., 13 (2000) 140.
- [66] F. D. C. Oliveira et al., IEEE Trans. on Appl. Supercond., 16 (2006) 15.
- [67] H. Fleming, Notas de aula do curso de "Supercondutividade: Teorias Clássica", não publicado.
- [68] J. W. C. Vries et al., Physica C, 157 (1989) 406.
- [69] V. Ambegaokar et al., Phys. Rev. Lett., 10 (1963) 486.