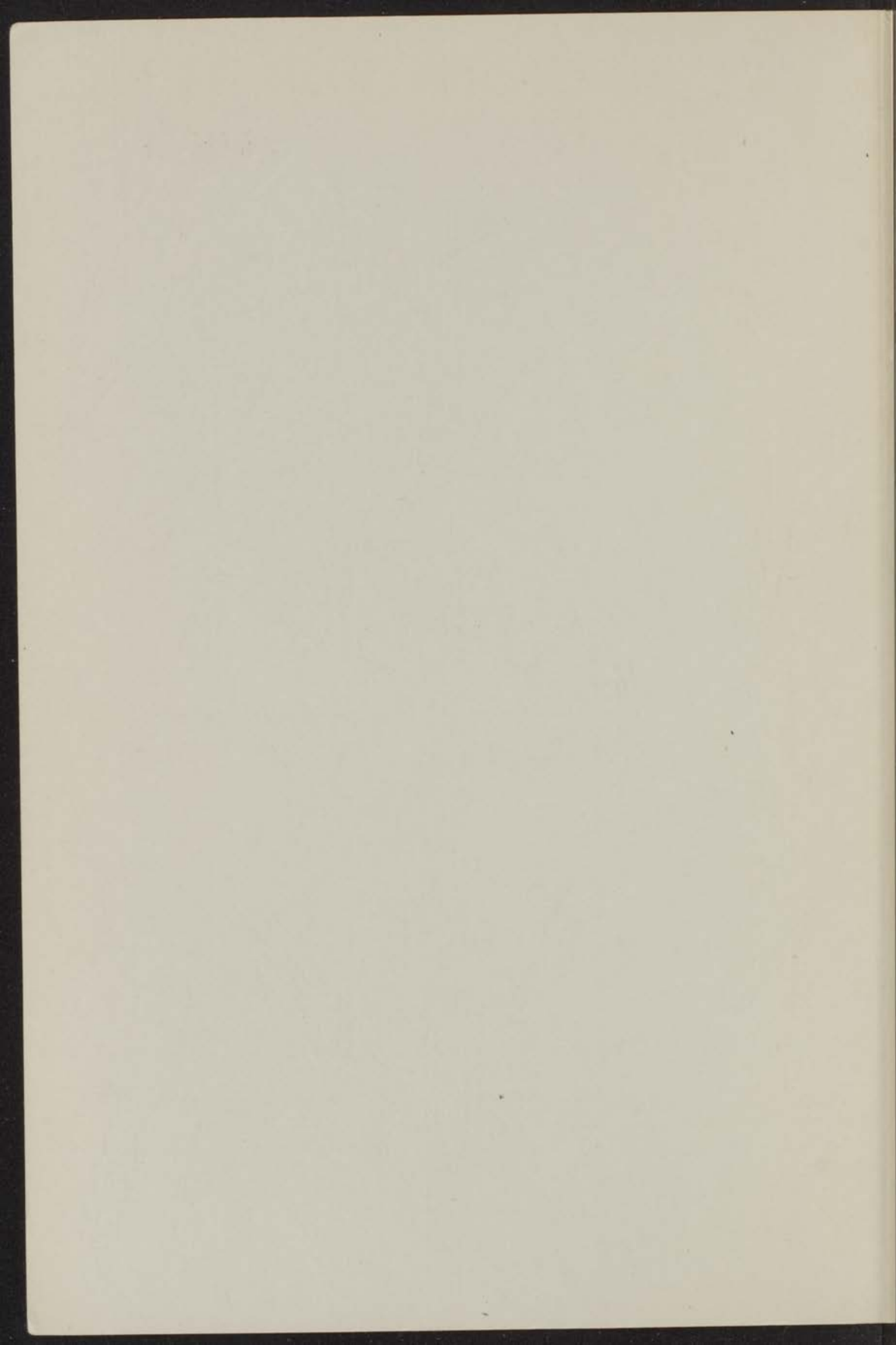


N X H

HYSTERESEVERSCHIJNSELEN  
IN EEN BUNDEL  
SUPERGELEIDENDE  
NIOBIUMDRADEN

INSTITUUT-LORENTZ  
voor theoretische natuurkunde  
Nieuwsteeg 18-Leiden-Nederland

S. H. GOEDEMOED



29 MEI 1967

INSTITUUT-LORENTZ  
voor theoretische natuurkunde  
Nieuwsteeg 18-Leiden-Nederland

kast dissertaties

123456

HYSTERESEVERSCHIJNSELEN  
IN EEN BUNDEL SUPERGELEIDENDE NIOBIUMDRADEN

HYSTERESEVERSCHIJNSELEN  
IN EEN BUNDEL  
SUPERGELEIDENDE  
NIOBIUMDRADEN

RESUME

De hysteresevervalsingen van de magnetische veldsterkte  $H$  en de magnetische flux  $\Phi$  zijn gemeten voor een bundel van niobiumdraden die onder invloed van een wisselend magnetisch veld staat. De hysteresevervalsingen zijn afhankelijk van de draaddiameter, de draadafstand en de draadlengte. De hysteresevervalsingen zijn het grootst voor de kleinste draaddiameter en de grootste draadafstand. De hysteresevervalsingen zijn het kleinst voor de grootste draaddiameter en de kleinste draadafstand. De hysteresevervalsingen zijn het grootst voor de kleinste draadlengte en het kleinst voor de grootste draadlengte.

CONCLUSIE

De hysteresevervalsingen van de magnetische veldsterkte  $H$  en de magnetische flux  $\Phi$  zijn afhankelijk van de draaddiameter, de draadafstand en de draadlengte. De hysteresevervalsingen zijn het grootst voor de kleinste draaddiameter en de grootste draadafstand. De hysteresevervalsingen zijn het kleinst voor de grootste draaddiameter en de kleinste draadafstand. De hysteresevervalsingen zijn het grootst voor de kleinste draadlengte en het kleinst voor de grootste draadlengte.

THE UNIVERSITY OF CHICAGO  
LIBRARY

HYSTERESEVERSCHIJNSELEN  
IN EEN BUNDEL  
SUPERGELEIDENDE  
NIOBIUMDRADEN

PROEFSCHRIFT

TER VERKRIJGING VAN DE GRAAD VAN DOCTOR  
IN DE WISKUNDE EN NATUURWETENSCHAPPEN  
AAN DE RIJKSUNIVERSITEIT TE LEIDEN, OP GE-  
ZAG VAN DE RECTOR MAGNIFICUS DR. K. A. H.  
HIDDING, HOOGLERAAR IN DE FACULTEIT DER  
GODGELEERDHEID, TEN OVERSTAAN VAN EEN  
COMMISSIE UIT DE SENAAT TE VERDEDIGEN OP  
WOENSDAG 24 MEI 1967 TE 14 UUR

DOOR

SIERK HENDRIK GOEDEMOED  
GEBOREN TE 's GRAVENHAGE IN 1934

HYPERBOLISCHESCHEN  
IN EIN BUNDEL  
SUPERFIZIEN  
VON M. DR. A. D. KLERK

PROMOTOR: PROF. DR C. J. GORTER

DIT PROEFSCHRIFT IS BEWERKT ONDER TOEZICHT VAN  
DR D. DE KLERK

1964

DE WETENSCAPEN  
VAN DE UNIVERSITEIT  
VAN AMSTERDAM

AMSTERDAM



STELLINGEN

BEHORENDE BIJ HET PROEFSCHRIFT VAN

S. H. GOEDEMOED

## I

Het is van belang om een relatie voor de wisselwerking tussen fluxdraden en inhomogeniteiten van het rooster van een supergeleider van de tweede soort niet alleen te toetsen aan de magnetisatiekromme maar ook aan de warmte-ontwikkeling.

Dit Proefschrift, Hoofdstuk V.

## II

Bij het opstellen van een criterium voor het optreden van fluxsprongen in supergeleiders van de tweede soort dient de latente warmte mede in rekening te worden gebracht.

## III

Om de geldigheid van de relatie  $J(B+B_0)=\alpha$  na te gaan, verdient het aanbeveling om het magnetische gedrag van de supergeleiders, dat gedeeltelijk met deze relatie beschreven kan worden, te onderzoeken bij  $T \lesssim T_c$ .

Y. B. Kim, C. F. Hempstead and A. R. Strnad, Phys. Rev. Letters **9**, 306 (1962); Phys. Rev. **131**, 2486 (1963).

## IV

De hoek bij  $H_{c2}$  tussen de magnetisatiekrommen in het eerste en het tweede kwadrant is een goede maat voor het onomkeerbare magnetische gedrag ten gevolge van inhomogeniteiten van het rooster.

Dit proefschrift, fig. (III, 1, 2, 3 en 5).

## V

Men kan verwachten, dat uit desoriëntatie-experimenten aan gerichte radioactieve kernen, opgenomen in diamagnetische kristallen, meer gegevens over de hyperfijnstructuur kunnen worden verkregen dan wanneer deze kernen in ferromagnetische metalen zijn opgenomen.

J. E. Templeton and D. A. Shirley, Phys. Rev. Letters **18**, 240 (1967).

E. Matthias and R. J. Holliday, Phys. Rev. Letters **17**, 897 (1966).

## VI

Bij de beschrijving van de kernspin-roosterrelaxatie in verdunde paramagnetische kristallen bij lage temperaturen moet de wisselwerking tussen de kernen en het dipool-dipoolsysteem van de paramagnetische ionen in rekening worden

gebracht. Dit leidt niet in alle omstandigheden tot een relaxatietijd, welke onafhankelijk is van de temperatuur, zoals wel wordt aangenomen.

N. Bloembergen, Commun. Kamerlingh Onnes Lab., Leiden No. 277a; *Physica* **15**, 386 (1949).

G. R. Khutsishvili, *Soviet Physics J.E.T.P.* **15**, 909 (1962).

## VII

Het is van belang de waarschijnlijkheden van de gamma-overgangen van door neutronvangst aangeslagen even-evenkernen naar lagere niveaus te bestuderen als functie van de neutronenergie.

Hierdoor zou men gegevens kunnen verkrijgen omtrent eventuele collectieve eigenschappen van aangeslagen kernen.

H. Postma and E. R. Reddingius, *Physica* **34**, 541 (1967).

## VIII

Bij de definitie van een internationale praktische temperatuurschaal verdient het aanbeveling een nieuwe grootheid – de internationale praktische temperatuur – in te voeren en de eenheid hiervan gelijk te kiezen aan de eenheid van thermodynamische temperatuur.

## IX

Diffusiemetingen en molecuulstraalexperimenten leiden tot verschillen tussen de gebruikelijke potentiaalparameters voor de wisselwerking van een heliuma-atom met atomen van andere edelgassen. Het verdient aanbeveling eveneens molecuulstraalexperimenten uit te voeren met de zwaardere edelgassen ten einde te komen tot volledige vergelijking met de resultaten uit recente diffusiemetingen.

R. B. Bernstein and J. T. Muckerman, te publiceren in *Advances in Chemical Physics*; J. O. Hirschfelder, Ed. (John. Wiley and Sons, New York, 1967).

## X

Het verdient aanbeveling de Rijkssubsidieregeling voor de aankoop van hedendaagse kunstwerken uit te breiden ten koste van de zogenaamde „Contra-prestatieregeling”.

## XI

In verband met het tekort aan recreatiegebieden is het onjuist het gemakkelijk bereikbare gedeelte van het strand te verpachten aan verhuurders van strandstoelen en tenten.

Faint, illegible text at the top of the page, possibly a header or introductory paragraph.

Second block of faint, illegible text, appearing as a separate paragraph.

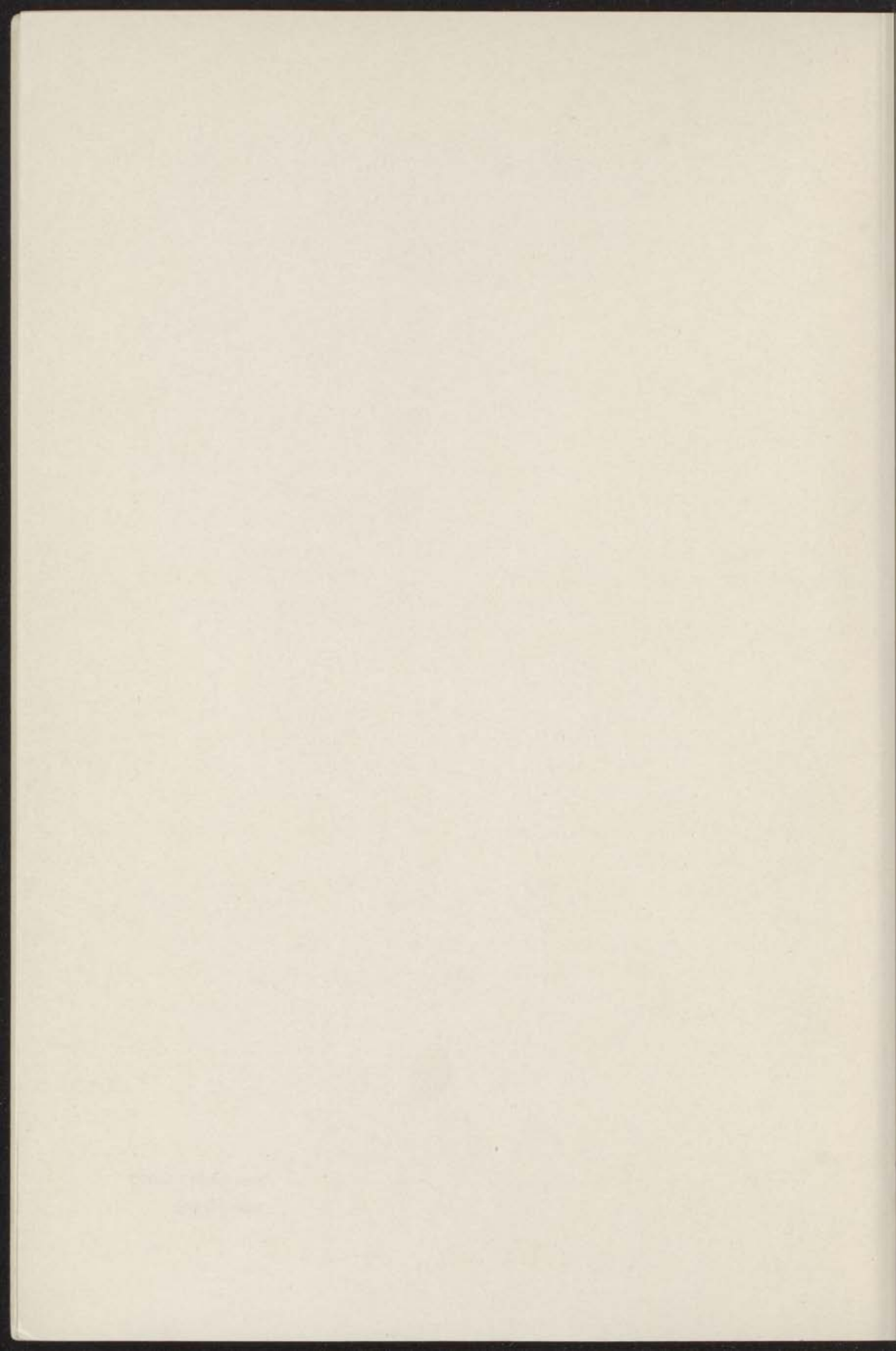
Third block of faint, illegible text, continuing the document's content.

Fourth block of faint, illegible text, showing further progression of the text.

Fifth block of faint, illegible text, likely a concluding paragraph or a section end.

Sixth block of faint, illegible text at the bottom of the page.

*aan mijn ouders  
aan Henny*



Ten einde te voldoen aan het verzoek van de Faculteit der Wiskunde en Natuurwetenschappen volgt hier een overzicht van mijn studie.

Na het behalen van het eindexamen H.B.S.-B aan de 1e Christelijke H.B.S. (thans Christelijk Lyceum Populierstraat geheten) te 's Gravenhage, volgde ik het tweede leerjaar van de H.T.S. aan de Prinsessegracht te 's Gravenhage; afdeling Weg- en Waterbouw.

In 1956, na het vervullen van de militaire dienstplicht, begon ik mijn studie aan de Rijksuniversiteit te Leiden. Het kandidaatsexamen in de Natuur- en Wiskunde met bijvak Sterrekunde legde ik in 1959 af. De gelegenheid, welke mij hierna geboden werd om ervaring op te doen in de experimentele natuurkunde op het Kamerlingh Onnes laboratorium behelsde de problematiek van de adiabatische demagnetisatie en meer nog die van het operationeel maken van de 4 MW-magneetspoel tot velden van de orde van 100 kOe. Een en ander resulteerde in een onderzoek naar de mogelijkheid om deze spoel te koelen met gedemineraliseerd water in plaats van orthodichloorbenzeen.

Na het afleggen van mijn doctoraal examen in de experimentele natuurkunde in oktober 1962, waarvoor ik de vereiste tentamens aflegde bij Prof. Dr S. R. de Groot, Prof. Dr P. Mazur, Prof. Dr J. A. M. Cox en Prof. Dr J. Kistemaker, ving ik een onderzoek aan over de hysteresevervalsingen van supergeleidend niobium, waarvan de resultaten grotendeels in dit proefschrift besproken worden.

Sinds 1960 heb ik geassisteerd op het practicum voor praecandidaten; vanaf 1964 als wetenschappelijk ambtenaar en vanaf 1966 als wetenschappelijk medewerker.

Tijdens het onderzoek voor dit proefschrift heb ik achtereenvolgens samengewerkt met Drs A. van der Giessen, Drs C. van Kolmeschate, Drs J. W. Metselaar en in laatste instantie met de Heren P. H. Kes en F. Th. A. Jacobs.

Veel hulp en medewerking heb ik verder mogen ondervinden van de leden van de technische staf van het Kamerlingh Onnes laboratorium, met name van de Heren J. Dunsbergen tijdens de experimenten met de 4 MW-spoel; A. R. B. Gerritse voor het glaswerk; H. R. Nater voor de opbouw van de meetapparatuur; T. Nieboer, A. F. M. Oosterbaan, W. H. P. van Iperen tijdens de heliummeetdagen en P. L. Blangé en W. B. Koelemeyer voor het vervaardigen van elektronische apparatuur. De Heer W. F. Tegelaar verzorgde de tekeningen van het proefschrift.

Zeer veel steun heb ik gedurende alle experimenten gehad aan de discussies met Dr D. de Klerk.

1870

...

...

...

...

...

...

...

...

...

...

...

...



## INHOUD

### HOOFDSTUK I. *Algemene inleiding*

1. Ten geleide . . . . .	1
2. De supergeleidende toestand . . . . .	2
3. De twee soorten supergeleiders . . . . .	3
4. De thermodynamica van de supergeleiders . . . . .	7
5. De Ginzburg-Landau theorie . . . . .	10
6. Het lagenmodel van van Beelen en Gorter . . . . .	17
7. Het fluxoidmodel . . . . .	20

### HOOFDSTUK II. *Opstellingen en meetmethoden*

1. Inleiding . . . . .	25
2. Het preparaat . . . . .	25
3. Bepaling van de magnetisatiekromme . . . . .	27
4. Bepaling van het temperatuurverloop . . . . .	29
5. De supergeleidende spoelmagneet . . . . .	33

### HOOFDSTUK III. *De experimentele resultaten*

1. Kort overzicht . . . . .	37
2. Bepaling van de magnetisatiekromme en het temperatuurverloop . . . . .	37
3. De kritische velden $H_{c1}$ en $H_{c2}$ . . . . .	42
4. De fluxsprongen . . . . .	47

### HOOFDSTUK IV. *Thermodynamische beschouwingen bij de onomkeerbare magnetisatieprocessen*

1. Ter oriëntatie . . . . .	53
2. Bepaling van $H_c$ . . . . .	53
3. Het fluxsprongcriterium van Gorter . . . . .	57

### HOOFDSTUK V. *De fluxverdeling binnen de supergeleidende draden*

1. Inleiding . . . . .	61
2. De pinnende kracht . . . . .	64
3. De bepaling van $\beta$ en $\mu_{c2}$ . . . . .	66
4. De magnetisatiekromme in het eerste en tweede kwadrant . . . . .	69
5. De warmte-ontwikkeling in de draden . . . . .	73
6. De fluxsprongen . . . . .	76

Summary . . . . .	81
-------------------	----

1. The first part of the report deals with the general situation of the country and the position of the various groups of the population. It is found that the country is in a state of economic depression and that the population is suffering from poverty and unemployment. The report also mentions that the government is unable to meet the needs of the people and that the situation is becoming increasingly desperate.

2. The second part of the report deals with the political situation. It is found that the government is corrupt and inefficient and that the people are dissatisfied with its actions. The report also mentions that there is a growing movement for independence and that the people are demanding a more democratic form of government.

3. The third part of the report deals with the social situation. It is found that the people are suffering from ill health and that there is a high rate of infant mortality. The report also mentions that there is a lack of education and that the people are ignorant and superstitious.

4. The fourth part of the report deals with the economic situation. It is found that the country is in a state of economic depression and that the people are suffering from poverty and unemployment. The report also mentions that the government is unable to meet the needs of the people and that the situation is becoming increasingly desperate.

5. The fifth part of the report deals with the military situation. It is found that the army is small and ill-equipped and that the country is vulnerable to attack. The report also mentions that there is a growing movement for independence and that the people are demanding a more democratic form of government.

6. The sixth part of the report deals with the foreign situation. It is found that the country is in a state of economic depression and that the people are suffering from poverty and unemployment. The report also mentions that the government is unable to meet the needs of the people and that the situation is becoming increasingly desperate.

# Hoofdstuk I

## ALGEMENE INLEIDING

### 1. TEN GELEIDE

De experimenten, welke wij eind 1962 aanvingen, waren het gevolg van de ontdekking van supergeleidende materialen, die in zeer sterke magneetvelden nog in staat waren tot het geleiden van zeer grote elektrische stromen zonder energieverlies. Het hoeft geen betoog, dat zulke stoffen van groot belang kunnen zijn voor de bouw van magneetspoelen ter opwekking van sterke magneetvelden. Op grond van het speciale karakter van onze afdeling van het Kamerlingh Onnes laboratorium – een 4 MW installatie voor het genereren van continue magneetvelden tot ongeveer 90 kOe en een 180 kJ condensatorbatterij voor velden tot 400 kOe gedurende korte tijden (20 msec) staan hier centraal – kan men onze grote interesse in deze materialen begrijpen. Daar ons geen duidelijk doel voor ogen stond kunnen wij het onderzoek, waarvan de resultaten in dit proefschrift gedeeltelijk worden gegeven, het beste kenschetsen als te zijn geleid door de waarnemingen zelf. De belangrijke factoren hierbij waren natuurlijk de gekozen, in hoofdstuk II beschreven, experimentele opstelling en de keuze van het te onderzoeken materiaal. Een der eerste preparaten – bestaande uit niobiumdraad, dat bij een der groepen van het laboratorium voorradig was – vertoonde reeds een gedrag dat sterk deed denken aan dat van de specifieke magneetmaterialen, hoewel de kritische magneetvelden veel zwakker waren. Dit laatste is het tegendeel van een bezwaar, daar wij nu een volledig overzicht kregen, waar anderen – vanwege de beperktheid van de magneetvelden, die ter beschikking stonden – slechts een gedeelte van de magnetisatiekromme konden waarnemen.

Dat de experimenten, ondanks het gemis aan een duidelijk plan, hebben geleid tot interessante conclusies en interpretaties hopen wij aan te tonen in de hoofdstukken IV en V; in hoofdstuk III worden de resultaten meer algemeen besproken.

Om de lezer, die niet bekend is met het verschijnsel „supergeleiding” in te leiden in de voor ons belangrijke begrippen en grootheden, hebben wij gemeend de phaenomenologische theorie van Ginzburg en Landau te moeten gebruiken. Nadat in dit hoofdstuk een kort historisch overzicht en een aanduiding van het mechanisme, dat verantwoordelijk is voor de supergeleidende toestand, is gegeven, wordt deze theorie via een thermodynamische beschrijving ingeleid. Vervolgens wordt uit de uitdrukking voor de vrije energie van Ginzburg en Landau die van de, door v. Beelen en Gorter voorgestelde, Gibbs vrije energie afgeleid. Op grond van de afleiding lijkt het toegestaan om twee aanpasbare parameters in de laatstgenoemde uitdrukking op te nemen, waardoor weliswaar de waarde van het model in theoretisch opzicht niet toeneemt, doch waardoor wel een redelijke overeenkomst der resultaten met die van een beter gefundeerd en doorberekend model tot stand komt. De bevreemding, die misschien zal rijzen vanwege deze handelwijze zal in hoofdstuk V enigszins gecompenseerd worden.

## 2. DE SUPERGELEIDENDE TOESTAND

Ten gevolge van het vloeibaar maken van heliumgas door H. Kamerlingh Onnes in 1908 werd het temperatuurgebied, toegankelijk voor experimenteel onderzoek, naar beneden uitgebreid tot ongeveer 1°K.

Daar de supergeleidende toestand zich in de meeste gevallen bij deze temperaturen manifesteert en omdat de eigenschappen van een materiaal in deze omstandigheid zoveel verschillen van die in de normale toestand werd men er reeds spoedig mee geconfronteerd.

De grote belangstelling in die dagen betrof de elektrische restweerstand van metalen. Hierdoor werd de eerste eigenschap van de supergeleidende toestand – tevens bepalend voor zijn naamgeving – namelijk het abrupt verdwijnen van de elektrische weerstand beneden een bepaalde kritische temperatuur  $T_c$  ontdekt. Het was H. Kamerlingh Onnes, die dit voor het eerst waarnam aan Hg in 1911.<sup>1)</sup>

Sinds dat ogenblik zijn veel meer elementen (23), legeringen en mengsels<sup>2) 3)</sup> supergeleidend gebleken met overgangstemperaturen liggend beneden ongeveer 18°K. Van de elementen heeft Nb de hoogste overgangstemperatuur, namelijk  $T_c \approx 9,2^\circ\text{K}$ .

De beschrijving van het mechanisme, dat verantwoordelijk gesteld kan worden voor het verdwijnen van de elektrische weerstand en voor de vele andere eigenschappen van supergeleiders, die reeds experimenteel waargenomen waren, werd pas in 1957 gegeven. Toen presenteerden Bardeen, Cooper en Schrieffer<sup>4)</sup> een theorie, volgens welke supergeleiding ontstaat, wanneer een wisselwerking tussen geleidingselectronen leidt tot sterke correlaties onderling; speciaal tussen electronparen van tegengestelde spin (en, in het niet stroom-

voerende geval, van tegengestelde impuls). Zij toonden aan, dat de voornaamste wisselwerking tot stand komt door middel van een uitwisseling van virtuele phononen. In eenvoudige termen <sup>5)</sup> betekent dit, dat het rooster aangeslagen wordt door een bewegend electron, waardoor een vibratie van het rooster ontstaat (deze vibraties zijn gequantiseerd en worden phononen genoemd; hun korte bestaanstijd maakt het onnodig de energie te behouden in het proces, zodat zij worden aangeduid met „virtuele” phononen); als de voortbewegende fluctuatie in de ladingsverdeling van het rooster – welke het resultaat is – een ander electron bereikt, zal deze op zijn beurt worden aangetrokken.

Het fundamentele postulaat van de B.C.S. theorie is nu, dat supergeleiding zal optreden, wanneer de aantrekkende wisselwerking de afstotende Coulomb interactie overheerst.

Wanneer wij ten slotte de wisselwerkingsenergie ( $\sim 10^{-8}$  eV) – zoals uit het energieverschil tussen de normale en de supergeleidende toestand kan worden berekend – met de Fermi energie van de geleidingselectronen ( $\sim 10$  eV) vergelijken, dan komt ons onwillekeurig het gezegde voor de geest: „kleine oorzaken hebben grote gevolgen”.

### 3. DE TWEE SOORTEN SUPERGELEIDERS

Overeenkomstig hun gedrag in een magneetveld verdeelt men de supergeleiders in twee soorten. Alle supergeleidende elementen, uitgezonderd Nb en V behoren tot de eerste soort, terwijl de meeste legeringen en mengsels tot de tweede soort behoren. Het is zelfs mogelijk, dat een supergeleider van de eerste soort bij temperaturen in de buurt van  $T_c$  overgaat in een supergeleider van de tweede soort bij lagere temperaturen. Dit is o.a. aangetoond voor een In-Bi legering <sup>6)</sup>.

*De supergeleider van de eerste soort:* Wanneer wij de magnetische inductie  $\mathbf{B}$  in een cylinder, bestaande uit het supergeleidende materiaal van de eerste soort, beschouwen als functie van een toenemend, homogeen, uitwendig magneetveld  $H_e$  evenwijdig aan de as van de cylinder, dan nemen wij waar – althans in het geval, dat de straal  $R$  van de cylinder veel kleiner is dan zijn lengte  $L$  – dat de supergeleider volmaakt diamagnetisch ( $\mathbf{B}=0$ ) is tot een bepaald kritisch veld  $H_c$ . Hier vindt een overgang plaats van de supergeleidende naar de normale toestand en  $\mathbf{B}$  wordt abrupt gelijk aan  $H_e$  (zie figuur I. 1; weg 1), als het materiaal ten minste niet magnetisch is in de normale toestand.

Wanneer wij nu de supergeleider opvatten als een volmaakte geleider, dat wil zeggen dat de enige opmerkelijke eigenschap ervan het weerstandsloos geleiden van elektrische stromen is, dan zijn wij in staat dit gedrag te beschrijven <sup>7)</sup>. De bewegingsvergelijking van een electron met massa  $m$  en lading  $e$  in aanwezigheid van een elektrisch veld  $\mathbf{E}$  luidt dan namelijk:

$$m \frac{dv}{dt} = e \mathbf{E}, \quad (I.3.1)$$

zodat wij met de stroomdichtheid  $\mathbf{J} = n e \mathbf{v}$ , waarin  $n$  de dichtheid van de geleidingselectronen is, komen tot:

$$\mathbf{E} = \frac{4 \pi \lambda^2}{c^2} \frac{d\mathbf{J}}{dt}. \quad (I.3.2)$$

Voor de parameter  $\lambda$ , welke de dimensie van een lengte heeft, geldt dan:

$$\lambda^2 \equiv \frac{m c^2}{4 \pi n e^2}. \quad (I.3.3)$$

Passen wij vervolgens de Maxwell vergelijkingen:

$$\text{rot } \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{d\mathbf{B}}{dt}; \quad \text{rot } \mathbf{H} = \frac{4 \pi}{c} \mathbf{J} \quad \text{en} \quad \text{div } \mathbf{B} = 0 \quad (I.3.4)$$

toe op (I.3.2), dan krijgen wij voor de volmaakte geleider:

$$\Delta \frac{d\mathbf{B}}{dt} = \frac{1}{\lambda^2} \frac{d\mathbf{B}}{dt}. \quad (I.3.5)$$

In het geval  $R \gg \lambda$  – en daar de grootteorde van  $\lambda$  ongeveer  $10^{-6}$  cm is, is dit meestal zo – kunnen wij als oplossing van (I.3.5) nemen:

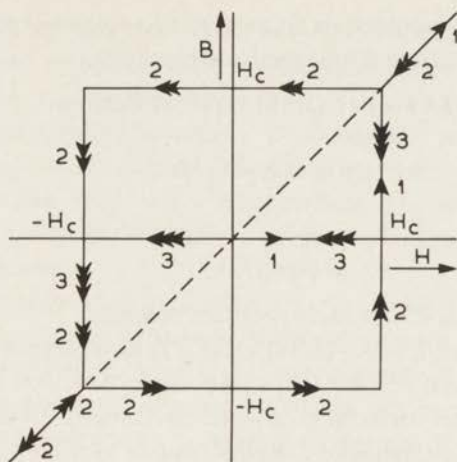
$$\frac{dB(r)}{dt} = \frac{dH_e}{dt} e^{-(R-r)/\lambda}; \quad (I.3.6)$$

de vectornotatie is nagelaten, daar de richting der velden evenwijdig aan de as van de cylinder is.

De relatie (I.3.6) toont aan, dat op een afstand van het oppervlak, welke veel groter is dan  $\lambda$ , de verandering van de inductie ten gevolge van een variatie van  $H_e$  verwaarloosbaar is. Dit demonstreert, dat in het inwendige van de cylinder het veld niet verandert van de waarde, die het had toen het materiaal volmaakt geleidend werd.

Wij mogen dus verwachten, dat wanneer  $H_e$  verlaagd wordt van boven  $H_c$ :  $B = \text{constant} = H_c$  (zie figuur I.1; weg 2) zal zijn. Ook wanneer  $H_e$  hierna in tegengestelde richting toeneemt, zal deze instelling gehandhaafd blijven tot bij  $H_e = -H_c$  de volmaakte geleiding ophoudt en  $B$  abrupt gelijk wordt aan  $-H_c$ . Laten wij hierna  $H_e$  weer in de oorspronkelijke richting toenemen, dan zal de toestand  $B = -H_c$  bestaan tot weer  $H_e = H_c$ , enzovoort.

De ontdekking van Meissner en Ochsenfeld in 1933<sup>8)</sup>, dat een groot gedeelte van de bij  $H_c$ , in een bol van zuiver Sn, aanwezige flux bij lagere waarden van  $H_e$  sterk verminderde, zelfs bijna geheel verdween, wees erop dat de supergeleidende toestand meer inhield dan het weerstandsloos geleiden van elektrische stromen. Als gevolg van deze waarneming suggereerde Gorter<sup>9)</sup>, dat



Figuur I.1

De magnetische inductie als functie van het aangelegde magneetveld in het geval van een volmaakte geleider (1,2) en in het geval van een supergeleider van de eerste soort (1,3), welke geen roosterfouten bevat.

$B=0$  een karakteristieke eigenschap van een materiaal in de supergeleidende toestand is en dat het eerder, door Tuyn<sup>10)</sup>, waargenomen gedrag – overeenkomstig weg (2) van figuur (I.1) – diende te worden toegeschreven aan inhomogeniteiten in het materiaal\*). Ten gevolge hiervan zouden aan de buitenzijde van het supergeleidende lichaam door een geringe fluxverandering, supergeleide stromen geïnduceerd worden in zeer dunne gebiedjes, die hiervoor, wat betreft hun eigenschappen – bij voorbeeld grotere waarden van  $H_c$  dan in het grootste gedeelte van het lichaam – in aanmerking komen. Hierdoor zou het veld in de door deze stromen omsloten gebieden op een waarde groter dan  $H_c$  (van deze gebieden) worden gehouden.

De „hystereselus”, die gemeten zou worden voor een ideale, dat wil zeggen homogene, supergeleider van de eerste soort wordt gegeven in figuur (I.1; weg 3).

Ten einde de electromagnetische eigenschappen van een supergeleider te kunnen beschrijven, stelden F. en H. London<sup>12)</sup> in 1935 voor, de volgende relaties aan de Maxwell vergelijkingen toe te voegen:

$$\mathbf{E} = \frac{4\pi\lambda^2}{c^2} \frac{d\mathbf{J}_s}{dt} \quad (I.3.7)$$

en:

$$\frac{4\pi\lambda^2}{c} \text{rot } \mathbf{J}_s + \mathbf{B} = 0. \quad (I.3.8)$$

\* Een kort overzicht van de ontwikkeling der inzichten omtrent het verschijnsel „supergeleiding” tot 1940 werd gegeven door Gorter<sup>11)</sup> in een tafelrede tijdens de „International Conference on the Science of Superconductivity” in de Colgate University te Hamilton (26-29 augustus 1963).

De relatie (I.3.7) representeert de eigenschap van volmaakt geleidingsvermogen, terwijl (I.3.8) het perfecte diamagnetisme beschrijft.

Uit de relaties (I.3.4 b, c) en (I.3.8) verkrijgt men nu:

$$\Delta \mathbf{B} = \frac{1}{\lambda^2} \mathbf{B} \quad (\text{I.3.9})$$

en dus ( $R \gg \lambda$ ):

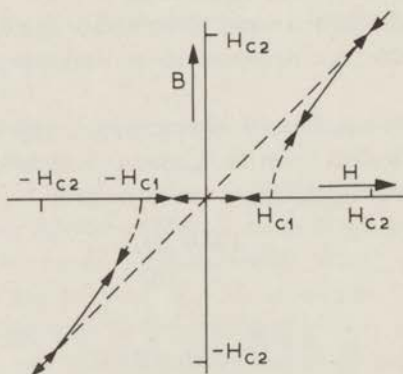
$$B(r) = H_e e^{-(R-r)/\lambda}, \quad (\text{I.3.10})$$

welke relatie inderdaad het Meissnereffect beschrijft.

Daar het onmogelijk is om (I.3.8) uit (I.3.7) te verkrijgen en ook (I.3.7) niet uit de eigenschap van perfect diamagnetisme te herleiden is, kan worden geconcludeerd, dat het volmaakte geleidingsvermogen en het volmaakte diamagnetisme twee onafhankelijke eigenschappen van de supergeleidende toestand zijn.

*De supergeleider van de tweede soort:* Indien de hiervoor genoemde cylinder zou hebben bestaan uit het supergeleidende materiaal van de tweede soort, dan zouden wij in het geval van het toenemende, axiale, magneetveld kunnen waarnemen (zie figuur I.2), dat de supergeleider zich slechts tot een zekere waarde van  $H_e$ , aangeduid door  $H_{c1}$ , als een perfecte diamagneet gedraagt. Wanneer het magneetveld deze waarde  $H_{c1}$  overschrijdt zien wij, dat de inductie binnen de supergeleider toeneemt en wel zodanig, dat de verhouding van de inductie en het aangelegde magneetveld groter wordt naarmate  $H_e$  toeneemt; wanneer ten slotte  $H_e$  de waarde  $H_{c2}$  bereikt, is deze verhouding gelijk aan één geworden.

De veronderstelling, dat bij  $H_{c2}$  de supergeleidende toestand volledig is overgegaan in de normale toestand, is slechts ten dele waar. Aan het oppervlak van



Figuur I.2

De afhankelijkheid van de magnetische inductie, binnen een homogene supergeleider van de tweede soort, van het aangelegde magneetveld.



de supergeleider in een laagje ter dikte van enkele honderden Å, afhankelijk van de aard van het materiaal, blijkt de supergeleidende toestand te kunnen bestaan tot ongeveer  $1,7 H_{c2}$  (ook bij de supergeleiders van de eerste soort kan de oppervlaktesupergeleiding optreden). De maximale, supergeleide, stromen zijn echter te gering om een experimenteel waarneembaar verschil tussen  $B$  en  $H_e$  teweeg te brengen, zodat wij – afgezien van een enkele uitzondering – geen onderscheid zullen maken tussen voornoemd oppervlaktelaagje en de kern van de supergeleider.

Omdat de experimenten van Shubnikov e.a.<sup>13)</sup> voor het eerst duidelijk maakten, dat de toestand, waarin de supergeleider zich bevindt voor  $H_{c1} < H_e < H_{c2}$  eveneens een evenwichtstoestand is, sprak men in dat geval van de „Shubnikov fase”. Latere interpretaties leidden, op grond van een energetisch voordeliger opsplitsing in supergeleidende en normale gebiedjes tot de aanduiding „supergeleidende mengtoestand”, terwijl de wijze, waarop de opsplitsing geschiedt de naam „vortextoestand” verkieslijk maakte. Wij nemen ons voor zoveel mogelijk de aanduiding „mengtoestand” te gebruiken.

In figuur (I.2) is slechts aangegeven, hoe  $B$  zal veranderen in een ideale supergeleider van de tweede soort, indien het magneetveld de volgende reeks doorloopt:  $0, H_{c2}, 0, -H_{c2}$ , enzovoort. Wij merken hierbij op, dat nog nooit een volledig éénduidige  $B(H_e) \sim$  relatie gemeten is, hetgeen vooral het verloop van  $B$  bij  $H_{c1}$  betreft (onderbroken lijn in figuur (I.2)).

In het geval van Nb suggereren de metingen van Finnemore e.a.<sup>14)</sup> een lineair, zeer steil verloop van  $B$  bij  $H_{c1}$ .

Bij  $H_{c2}$  is de situatie duidelijker; hier verloopt  $B$  eveneens lineair met  $H_e$  met een helling, welke in de meeste gevallen slechts weinig groter is dan één.

#### 4. DE THERMODYNAMICA VAN DE SUPERGELEIDERS

Als het magnetisatieproces omkeerbaar is, is het mogelijk om op vruchtbare wijze de thermodynamica toe te passen. Zodoende kan veel informatie verkregen worden zonder de noodzaak de juiste microscopische theorie te kennen, die dit speciale gedrag beschrijft.

Gorter en Casimir<sup>15)</sup> deden dit voor de supergeleiders van de eerste soort in 1934, direct na de ontdekking van Meissner. Zij gingen daarbij uit van de Gibbs vrije energie. In het geval van de door ons beschouwde cylinder, waarvan de ontmagnetisatiefactor gelijk aan nul gesteld kan worden, kunnen wij de integratie over het volume achterwege laten. Wij krijgen dan voor de Gibbs vrije energiedichtheid:

$$G(T, H_e) = U - TS - MH_e, \quad (\text{I.4.1})$$

waarin  $M$ , het magnetisch moment, wordt gegeven door:

$$M = \frac{B - H_e}{4\pi} \quad (I.4.2)$$

Daar  $G$  slechts veranderd kan worden door variatie van  $T$  en  $H_e$ :

$$dG = -SdT - MdH_e, \quad (I.4.3)$$

zien wij, dat in geval van een isotherme magnetisatie van een supergeleider van de eerste soort geldt:

$$G_s(H_e) = G_s(0) + \frac{H_e^2}{8\pi} \quad (I.4.4)$$

en ook:

$$G_s(H_c) = G_n(H_c), \quad (I.4.5)$$

omdat  $T$  en  $H_e$  constant gehouden worden bij de overgang.

Omdat de magnetische susceptibiliteit van het normale materiaal in het algemeen verwaarloosbaar klein is ( $G_n(H_c) = G_n(0)$ ), krijgen wij:

$$G_n(0) - G_s(0) = \frac{H_c^2}{8\pi}. \quad (I.4.6)$$

Uitgaande van deze laatste relatie is het mogelijk enige interessante thermodynamische grootheden te berekenen, zoals:

1): de verandering van de entropie  $S$  bij  $H_c$ , ( $S = -(\partial G / \partial T)_H$ ):

$$\Delta S \equiv S_s(H_c) - S_n(H_c) = S_s(0) - S_n(0) = \frac{H_c}{4\pi} \left( \frac{dH_c}{dT} \right), \quad (I.4.7)$$

daar bij de variatie van  $H_e$  ( $< H_c$ ) de entropie niet verandert;

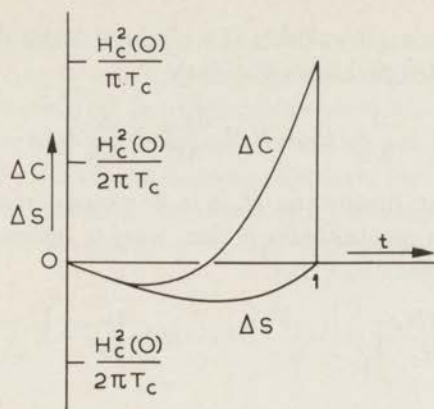
2): de verandering van de soortelijke warmte  $C$  ( $C = T(\partial S / \partial T)_H$ ):

$$\Delta C \equiv C_s(H_c) - C_n(H_c) = C_s(0) - C_n(0) = \frac{T}{4\pi} \left[ H_c \left( \frac{d^2 H_c}{dT^2} \right) + \left( \frac{dH_c}{dT} \right)^2 \right]. \quad (I.4.8)$$

De temperatuurafhankelijkheid van  $H_c$  - bekend uit de magnetisatiemetingen - maakt het mogelijk de bovengenoemde grootheden numeriek te berekenen. In figuur (I.3) wordt het verloop weergegeven, waarbij is aangenomen, dat  $H_c$  parabolisch afhankelijk is van de temperatuur:

$$H_c(t) = H_c(0) (1 - t^2); \quad t \equiv T/T_c, \quad (I.4.9)$$

hetgeen binnen een paar procent in overeenstemming is met de experimentele resultaten.



Figuur 1.3

Het verschil in soortelijke warmte en entropie tussen de supergeleidende en de normale toestand als functie van de gereduceerde temperatuur.

Een zelfde thermodynamische behandeling voor de supergeleiders van de tweede soort leidt tot de definitie van nog een (buiten  $H_{c1}$  en  $H_{c2}$ ) kritisch veld:

$$G_n(0) - G_s(0) = - \int_0^{H_c} M dH_e \equiv \frac{H_c^2}{8\pi}. \quad (I.4.10)$$

Dit betekent, dat  $H_c$  ( $H_{c1} < H_c < H_{c2}$ ) het veld is, waar de overgang zou hebben plaats gevonden, als de supergeleider tot de eerste soort zou hebben behoord en daarbij hetzelfde oppervlak van de magnetisatiekromme zou hebben. Op grond hiervan is de aanduiding gelijk aan die van het kritische veld van de supergeleiders van de eerste soort. Ook voor  $H_c$  van de supergeleiders van de tweede soort is een bijna parabolische temperatuurafhankelijkheid gevonden.

Door  $G$ , in de mengtoestand, te schrijven als:

$$G_m(H_e) = G_s(0) - \int_0^{H_e} M dH_e = G_n(0) + \int_{H_e}^{H_{c2}} M dH_e \quad (I.4.11)$$

kunnen wij ook nu weer de thermodynamische grootheden uit de magnetisatiekrommen berekenen.

Wij willen dit slechts doen voor de entropie vanwege het gebruik ervan bij latere discussies. Zoals wij reeds hebben opgemerkt is de magnetisatiekromme in de omgeving van  $H_{c2}$  lineair, zodat wij kunnen schrijven:

$$H_e < H_{c2} \quad 4\pi M = -\mu_{c2}(H_{c2} - H_e), \quad (I.4.12)$$

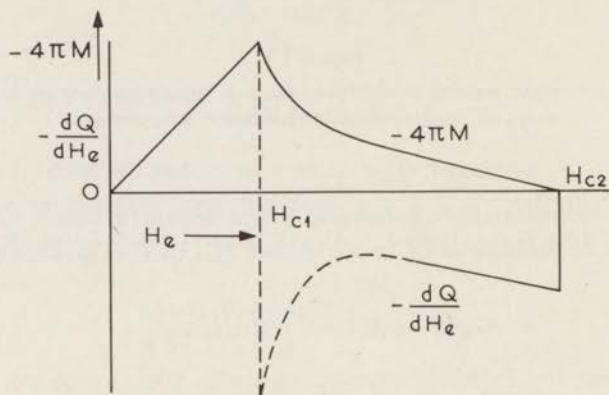
waarin dus  $\mu_{c2} \equiv (\partial 4\pi M / \partial H_e)_{H_{c2}}$  de helling van de magnetisatiekromme bij  $H_{c2}$  is.

Gebruiken wij nu de uitdrukking (I.4.12) in (I.4.11), dan krijgen wij na differentiatie naar de temperatuur ( $H_e \lesssim H_{c2}$ ):

$$S_m(H_e) = S_n(0) + \frac{1}{8\pi} (H_{c2} - H_e)^2 \frac{d\mu_{c2}}{dT} + \frac{\mu_{c2}}{4\pi} (H_{c2} - H_e) \frac{dH_{c2}}{dT}. \quad (\text{I.4.13})$$

Omdat de entropie een functie van  $H_e$  is in de mengtoestand, moet de supergeleider, in geval van een isotherm proces, warmte opnemen uit het bad bij variatie van  $H_e$ , volgens ( $H_e \lesssim H_{c2}$ ):

$$T \left( \frac{\partial S_m(H_e)}{\partial H_e} \right)_T = - \frac{T}{4\pi} (H_{c2} - H_e) \frac{d\mu_{c2}}{dT} - T \frac{\mu_{c2}}{4\pi} \frac{dH_{c2}}{dT} \quad (\text{I.4.14})$$



Figuur I.4

Het magnetische moment en de uit het bad opgenomen hoeveelheid warmte, per eenheid van veldvariatie, als functie van het aangelegde magneetveld, indien dit toeneemt.

In figuur (I.4) is het verloop van de uit het bad betrokken energie per eenheid van veldvariatie,  $(\partial Q/\partial H_e)_T$ , voor toenemende  $H_e$ , en dat van het magnetisch moment kwalitatief weergegeven. Hierbij is gebruik gemaakt van het experimentele gegeven, dat  $d\mu_{c2}/dT < 0$  en  $dH_{c2}/dT < 0$  voor  $0 < T \leq T_c$  zijn.

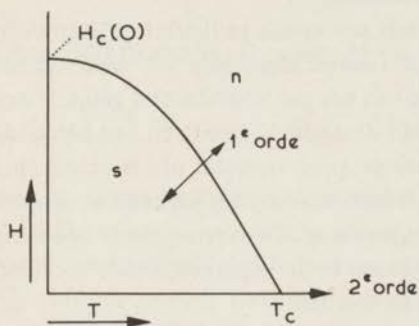
Indien het warmtecontact tussen de supergeleider en het bad groot is en de snelheid, waarmee  $H_e$  wordt opgezet constant en niet te groot is – zodat dus de temperatuurvariatie relatief klein is – geeft de warmtekromme in figuur (I.4) eveneens een indruk van het temperatuurverloop tijdens het magnetisatieproces.

## 5. DE GINZBURG-LANDAU THEORIE

Een goed overzicht van het thermische en magnetische gedrag der beide soorten supergeleiders wordt verkregen door in beider toestandsdiagrammen aan te geven van welke orde de overgangen zijn.

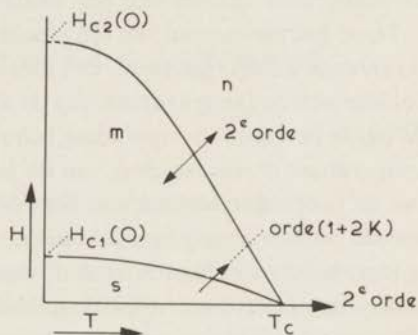
Volgens de classificatie van Ehrenfest<sup>16)</sup> wordt de orde van de overgang bepaald door de laagste orde van de afgeleide van de Gibbs vrije energie, welke een discontinuïteit op de overgangslijn vertoont.

Dit betekent dus voor de supergeleiders van de eerste soort (figuur (I.5)), dat alle overgangen, die in een magneetveld plaats vinden van de eerste orde zijn (discontinuïteit in  $M$  en  $S$ ); de overgang bij afwezigheid van een magneetveld – dus die bij  $T_c$  – is van de tweede orde ( $S$  continu,  $C$  discontinu; vergelijk figuur (I.3)).



Figuur I.5

Het fasesdiagram van een supergeleider van de eerste soort.



Figuur I.6

Het fasesdiagram van een supergeleider van de tweede soort.

Voor de supergeleiders van de tweede soort zijn de overgangen tussen de mengtoestand en de normale toestand (figuur (I.6)) van de tweede orde ( $M$  en  $S$  continu, de afgeleiden ervan naar  $T$  en  $H_e$  niet), terwijl evenals bij de supergeleiders van de eerste soort de overgang bij  $T_c$  eveneens van de tweede orde is. Omtrent de overgangen tussen de supergeleidende toestand en de mengtoestand is nog geen experimenteel uitsluitsel verkregen. De eerder genoemde metingen van Finnemore e.a. aan Nb<sup>14)</sup> wijzen op een tweede orde overgang. De theoretische berekeningen van o.a. Goodman<sup>17)</sup>, gebaseerd op de wisselwerking der vortices – welke in deze paragraaf besproken zullen worden – leiden tot een logaritmisch verloop van  $M$  en  $S$  voor  $H_e \gtrsim H_{c1}$ . Op grond van deze berekeningen suggereerde Gorter<sup>18)</sup> om deze overgangen aan te duiden met de orde  $1+2K$ . In de figuur (I.6) hebben wij de overgangen bij  $H_{c1}$  aangegeven door  $1+2K$ , waarbij  $0 < K \leq 1/2$ .

De overgang van de tweede orde is geruime tijd een onderwerp van spraak geweest. De voornaamste reden hiervoor was de opmerking, dat wanneer de Gibbs vrije energieën der beide toestanden ((1) en (2)) – met in toestand (1):  $G_1 < G_2$  – elkaar zouden raken in het overgangspunt, er zou moeten gelden, dat dan eveneens aan de andere zijde van het overgangspunt:  $G_1 < G_2$ , zodat er dus eigenlijk geen overgang zou kunnen plaats vinden. De enige manier

om deze opmerking te weerleggen, is dat een parameter – welke niet negatief kan worden – in toestand (I) de oorzaak van de lagere energie is. Wanneer deze bij de overgang verdwijnt is er geen analytische voortzetting van  $G_1$  na de overgang mogelijk. Voor zo'n soort parameter komt in aanmerking, een, die met een bepaalde ordening samenhangt.

Hoewel reeds op impliciete wijze door o.a. Bragg, Weiss en Néel deze overgang van een geordende naar een ongeordende toestand gebruikt was, heeft Gorter voor het eerst op expliciete wijze het vraagstuk van de tweede orde overgang door middel van een model behandeld<sup>19)</sup>:

Door het verwarmen van een vloeistof met zijn ermee in thermisch evenwicht verkerende damp (gezien als een ideaal gas) in een afgesloten vat, waarvan het volume zich zodanig aanpast, dat de druk van het gas voortdurend gelijk is aan de bij de heersende temperatuur behorende dampdruk, treedt bij een bepaalde temperatuur de verdamping van de laatste druppel vloeistof op. Beschouwing van de soortelijke warmte van het systeem leidt dan tot het herkennen van een tweede orde overgang bij die bepaalde temperatuur. De verdwijnende ordening is hier dus de vloeibare toestand, waarmee de in de supergeleidende toestand verkerende electronen vergeleken dienen te worden.

Van de ontwikkeling, die zich hierna voltrok, willen wij de lijn volgen:

- a) Gorter-Casimir<sup>20)</sup>; b) Landau-Lifshitz<sup>21)</sup>; c) Ginzburg-Landau<sup>22)</sup>.
- a) het twee-fluïda model, waarin de overgang bij  $T_c$  voor de supergeleiders van de eerste soort – tevens geldig voor de overeenkomstige overgang van de supergeleiders van de tweede soort – wordt besproken. De fractie van de geleidingselectronen, welke supergeleidend zijn, wordt hier genomen als de ordeparameter;
- b) de veronderstelling, dat de vrije energie ontwikkelbaar is in een machtsreeks van de ordeparameter (deze is immers klein bij de overgang) leidt tot het resultaat, dat de eerste en de derde orde termen in de reeks identiek nul moeten zijn, wanneer men een overgangslijn wil verkrijgen;
- c) door de ordeparameter een golffunctiekarakter te geven wordt het mogelijk, met behulp van het onder (b) verkregen resultaat, het magnetische gedrag van de supergeleiders van de tweede soort te beschrijven; in eerste instantie in het gebied dichtbij  $T_c$ , daar hier voor alle  $H_e$  ( $0 \leq |H_e| \leq H_{e2}$ ) de ordeparameter klein is.

Voor de afleiding van de door Ginzburg en Landau voorgestelde uitdrukking van de vrij energiedichtheid volgen wij de door de Gennes<sup>23)</sup> aangegeven weg, daar wij dan de ordeparameter kunnen ontleen aan het twee-fluïda model (vergelijk I.5. a). Omdat zal blijken, dat deze een golffunctiekarakter moet hebben, noteren wij hem als de waarschijnlijkheidsdichtheid van een golffunctie  $\psi$  (vergelijk I.5. c):

$$\frac{n_{s,e}}{n_{g,e}} \equiv |\psi|^2, \quad (I.5.1)$$

waarin dus  $n_{s,e}$  de dichtheid der supergeleidende electronen en  $n_{g,e}$  de dichtheid der geleidingselectronen – zowel supergeleidende als normale – is.

De uitdrukking voor de vrije energiedichtheid, indien geen magneetveld aanwezig is en  $T \lesssim T_c$ , kan geschreven worden (zie I.5 b) als:

$$F_s(T, 0) = F_n(T, 0) + a |\psi_0|^2 + \frac{b}{2} |\psi_0|^4. \quad (I.5.2)$$

Daar  $F_s(T, 0)$  minimaal moet zijn ten aanzien van  $|\psi_0|^2$ , krijgen wij:

$$|\psi_0|^2 = -\frac{a}{b}, \quad (I.5.3)$$

waarin  $\psi_0$  dus de evenwichtstoestand beschrijft, wanneer  $H_e = 0$ .

Beschouwen wij nu de mengtoestand van de supergeleiders van de tweede soort, waar het veld dus is binnengedrongen in het kernmateriaal, dan kunnen wij veronderstellen, dat aan de uitdrukking (I.5.2) termen van de vorm  $|\text{grad } \psi|^2$  en  $\mathbf{A}^2 |\psi|^2$  zullen moeten worden toegevoegd, waar  $\mathbf{A}$  – de magnetische vectorpotential – wordt bepaald door:

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \text{rot } \mathbf{A}(\mathbf{r}). \quad (I.5.4)$$

Daar, zoals de relatie (I.5.4) toont,  $\mathbf{A}(\mathbf{r})$  slechts bepaald is op een vrij te kiezen functie  $\text{grad } \chi(\mathbf{r})$  na, zou hieruit volgen, dat  $F_m(T, \mathbf{B})$  – de dichtheid van de vrije energie in de mengtoestand – niet éénduidig bepaald is.

Ten einde een ijk-invariante uitdrukking te verkrijgen, maken wij gebruik van het golf-functie-karakter van  $\psi$ . Nemen wij namelijk:

$$\psi(\mathbf{r}) = |\psi(\mathbf{r})| \exp(i\alpha(\mathbf{r})), \quad (I.5.5)$$

dan is:

$$|(-i \text{grad} - \varrho \mathbf{A}) \psi(\mathbf{r})|^2 \quad (I.5.6)$$

ijk-invariant, indien:

$$\text{grad } \alpha(\mathbf{r}) = \varrho \text{ grad } \chi(\mathbf{r}); \quad (I.5.7)$$

de factor  $\varrho$  is toegevoegd om dimensionele redenen.

De uitdrukking voor  $F_m(T, \mathbf{B})$  – indien  $T$  dichtbij  $T_c$  – wordt nu als volgt verondersteld:

$$F_m(T, \mathbf{B}) = F_n(T) + a |\psi|^2 + \frac{b}{2} |\psi|^4 + g |(-i \text{grad} - \varrho \mathbf{A}) \psi|^2 + \frac{\mathbf{B}^2}{8\pi} \quad (I.5.8)$$

Minimaliseren van de totale vrije energie –  $\int F_m dV$  – ten aanzien van  $\psi$  en  $\mathbf{A}$  levert de Ginzburg-Landau vergelijkingen:

$$a \psi + b |\psi|^2 \psi + g (-i \text{grad} - \varrho \mathbf{A})^2 \psi = 0 \quad (\text{I.5.9})$$

en:

$$\mathbf{J} = \frac{\varrho c g}{i} (\psi^* \text{grad} \psi - \psi \text{grad} \psi^*) - 2 \varrho^2 c g \psi^* \psi \mathbf{A}, \quad (\text{I.5.10})$$

waarbij wij aan het oppervlak van de supergeleider laten gelden, dat:

$$(-i \text{grad} - \varrho \mathbf{A})_n \psi = 0. \quad (\text{I.5.11})$$

Substitueren wij (I.5.11) in (I.5.10), dan vinden wij, dat aan het oppervlak  $\mathbf{J}_n = 0$ ; hetgeen inderdaad vanzelf spreekt aan de grenslaag van een supergeleider met een isolator of met vacuüm.

Een volgend resultaat wordt verkregen door substitutie van (I.5.5) in (I.5.10), hetgeen leidt tot:

$$\frac{\mathbf{J}(\mathbf{r})}{2 \varrho c g |\psi(\mathbf{r})|^2} = \text{grad} \alpha(\mathbf{r}) - \varrho \mathbf{A}(\mathbf{r}). \quad (\text{I.5.12})$$

Op grond van de éénduidigheid van  $\psi(\mathbf{r})$  moet, in geval van een gesloten weg door het kernmateriaal van de supergeleider – indien voortdurend  $\mathbf{J} = 0$  – gelden, dat:

$$\oint (\text{grad} \alpha - \varrho \mathbf{A}) \cdot d\mathbf{l} = 0, \quad (\text{I.5.13})$$

of:

$$n \cdot 2 \pi = \varrho \Phi, \quad (\text{I.5.14})$$

waarin  $n$  een geheel getal is. Dit betekent, dat de flux  $\Phi$  in de mengtoestand gequantiseerd is in éénheden  $\Phi_0 = 2\pi/\varrho$ . Binnen het raam van deze theorie kan de waarde van  $\Phi_0$  helaas niet bepaald worden. De microscopische theorie leidt tot:

$$\Phi_0 = \frac{h c}{2 e} (\approx 2.10^{-7} \text{ G cm}^2); \quad (\text{I.5.15})$$

een waarde, die inderdaad door experimenten is geverifieerd.

Wij willen dus verder volstaan met op te merken, dat:

$$\varrho = \frac{2 \pi}{\Phi_0} = \frac{4 \pi e}{h c}. \quad (\text{I.5.16})$$

De beide Ginzburg-Landau vergelijkingen leiden tot het invoeren van twee karakteristieke lengten, die voor de bespreking van de mengtoestand van belang zijn.

1) *De cohaerentielengte*; dit is de natuurlijke lengte, waarover  $\psi$  varieert, indien geen stromen en velden aanwezig zijn.

In het ééndimensionale geval wordt (I.5.9) dan:

$$-g \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + a \psi + b \psi^3 = 0, \quad (\text{I.5.17})$$



welke relatie door het invoeren van de gereduceerde variable,  $\psi = f \psi_0$ , en het gebruik van (I.5.3) overgaat in:

$$-\xi^2 \frac{\partial^2 f}{\partial x^2} - f + f^3 = 0, \quad (I.5.18)$$

waarin  $\xi$ , de cohaerentielengte, gegeven wordt door:

$$\xi^2 \equiv -\frac{g}{a}. \quad (I.5.19)$$

De eis, dat voor  $x \gg \xi$ , de waarde van  $f$  tot één zal naderen en dus  $\psi$  tot  $\psi_0$ , geeft als oplossing van (I.5.18):

$$f(x) = \text{tgh} \left( \frac{x}{\xi \sqrt{2}} \right), \quad (I.5.20)$$

waaruit blijkt, hoe  $\xi$  samenhangt met de verandering van  $\psi$ .

II) *De penetratiediepte*; deze wordt gedefinieerd door middel van de relatie (I.5.10). Beschouwen wij een supergeleider, welke de ruimte voor  $x > 0$  inneemt, terwijl die voor  $x < 0$  geheel leeg is dan wel wordt ingenomen door een isolator, dan zal de randvoorwaarde (I.5.11) gelden. Voor een zwak magneetveld in de  $z$ -richting krijgen wij dan uit (I.5.10):

$$\text{rot } \mathbf{J} + 2 \varrho^2 c g |\psi_0|^2 \mathbf{B} = 0. \quad (I.5.21)$$

Daar deze relatie analoog is aan de tweede Londonvergelijking (I.3.8), komen wij tot de definitie van de penetratiediepte  $\lambda$  in geval van de Ginzburg-Landau benadering:

$$\lambda^2 \equiv \frac{1}{8 \pi \varrho^2 g |\psi_0|^2}. \quad (I.5.22)$$

Voor de overgang bij  $H_{c2}$  maken wij gebruik van (I.5.9). Onder verwaarlozing van de term  $b |\psi|^2 \psi$  en de veronderstelling, dat  $\mathbf{B} = (0, 0, B)$  en  $\mathbf{A} = (0, Bx, 0)$ , krijgen wij dan:

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} = \left( \varrho^2 B^2 x^2 - \frac{1}{\xi^2} \right) \psi. \quad (I.5.23)$$

Uit de overeenkomst tussen (I.5.23) en de Schrödingervergelijking voor een ééndimensionale harmonische oscillator weten wij, dat de grootste waarde van  $B$ , waarvoor nog een normeerbare eigenfunctie te vinden is, is:

$$B_{c2} = H_{c2} = \frac{1}{\varrho \xi^2}. \quad (I.5.24)$$

Daar het verschil tussen de dichtheid van de vrije energie in de normale toestand en die in de supergeleidende toestand gelijk is aan  $H_{c2}^2/8 \pi$ , leidt de

relatie (I.5.2), wanneer de voorwaarde (I.5.3) hierin gesubstitueerd wordt, tot:

$$\frac{a^2}{b} = \frac{H_c^2}{4 \pi} \quad (\text{I.5.25})$$

Met behulp van de relaties (I.5.3; 19; 24; 25) kunnen wij uit de definitiebetrekking (I.5.22) afleiden, dat:

$$H_{c2} = \kappa \sqrt{2} H_c, \quad (\text{I.5.26})$$

waarin  $\kappa$ , de Ginzburg-Landau parameter, gelijk is aan het quotiënt van de penetratiediepte en de cohaerentielengte:

$$\kappa \equiv \frac{\lambda}{\xi}. \quad (\text{I.5.27})$$

Het optreden van twee soorten supergeleiders wordt hier dus toegeschreven aan de beide parameters  $\lambda$  en  $\xi$ . Indien namelijk  $\lambda > \xi/\sqrt{2}$  is, dan blijkt het mogelijk voor de supergeleider om door gedeeltelijke toelating van het veld in het kernmateriaal en begeleidende variaties in  $\psi$  de vrije energie te verlagen en in de mengtoestand te blijven tot in velden groter dan  $H_c$ . Het feit, dat het oppervlak van de magnetisatiekromme gelijk moet zijn aan  $H_c^2/8 \pi$  houdt in, dat de overgang van de supergeleidende toestand naar de mengtoestand moet plaats vinden bij een veldwaarde  $H_{c1}$ , kleiner dan  $H_c$ .

Is daarentegen  $\lambda < \xi/\sqrt{2}$ , dan treedt de mengtoestand niet op en de supergeleider is van de eerste soort.

Tot slot van deze algemene beschouwingen willen wij nog iets zeggen over de temperatuurafhankelijkheid van  $H_{c2}$ :

1) nemen wij de temperatuurafhankelijkheid van  $|\psi_0|^2$  overeenkomstig die van de ordeparameter in het twee-fluidamodel van Gorter en Casimir:

$$|\psi_0|^2 \approx 1 - t^4 \quad (\text{I.5.28})$$

en het parabolische temperatuurverloop van  $H_c$  (I.4.9), dan kunnen  $a$  en  $b$  uit de relaties (I.5.3) en (I.5.26) opgelost worden <sup>24)</sup>:

$$a = - \frac{H_c(0)^2}{4 \pi} \frac{(1-t^2)}{(1+t^2)} \quad (\text{I.5.29})$$

$$b = \frac{H_c(0)^2}{4 \pi} \frac{1}{(1+t^2)^2}. \quad (\text{I.5.30})$$

Nemen wij verder aan, dat  $g$  niet afhankelijk is van de temperatuur, hetgeen in de oorspronkelijke uitdrukking voor de vrije energie van Ginzburg en Landau het geval is, dan leidt de relatie (I.5.24) tot:

$$H_{c2}(t) = 2 \sqrt{2} \kappa(1) H_c(0) \left( \frac{1-t^2}{1+t^2} \right) \quad (\text{I.5.31})$$

en bijgevolg:

$$\kappa(0) = 2 \kappa(1) . \quad (\text{I.5.32})$$

2) met behulp van de microscopische theorie toonde Gorkov<sup>25)</sup> aan, dat dichtbij  $t=0$ :

$$\kappa(0) = \frac{1,77}{\sqrt{2}} \kappa(1) . \quad (\text{I.5.33})$$

Voor het temperatuurverloop van  $H_{c2}$  stelde hij vervolgens voor:

$$H_{c2}(t) = \kappa(1) H_c(0) (1,77 - 0,43 t^2 + 0,07 t^4) (1 - t^2) , \quad (\text{I.5.34})$$

hetgeen bij  $t \rightarrow 1$  tot hetzelfde resultaat leidt als (I.5.31).

## 6. HET LAGENMODEL VAN VAN BEELEN EN GORTER

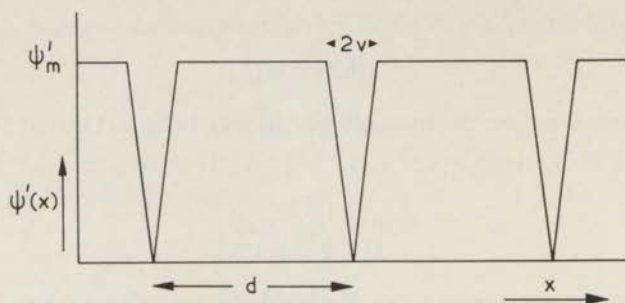
Ter illustratie van de mengtoestand, zoals deze optreedt bij de supergeleiders van de tweede soort, behandelen wij het lagenmodel van v. Beelen en Gorter<sup>26)</sup>. Dit model werd, uitgaande van een al in 1935 geformuleerde suggestie over een mengtoestand, voorgesteld als tegenhanger van het vortexmodel van Abrikosov<sup>27)</sup> (zie I.7); gedachtig een uitspraak van Ehrenfest, dat het weinig zin heeft quantummechanische formuleringen te gebruiken, indien vergelijking met de feiten dan niet leidt tot een verificatie van de constante van Planck. Met andere woorden, wanneer men een grootheid als het gemiddeld magnetisch moment wil bepalen, zal het er wellicht weinig toe doen, of men een supergeleider – in de mengtoestand – opgesplitst denkt in uiterst dunne normale laagjes, gescheiden door dikkere supergeleidende lagen, dan wel in normale cilindertjes, van elkaar gescheiden door supergeleidend materiaal.

Uit het vervolg zal blijken, dat het mogelijk is op basis van enkele weinig gecompliceerde, doch vrij willekeurige onderstellingen, zulk een model in te voeren. Een redelijke overeenstemming met de waarnemingen is dan nog geenszins een aanwijzing, dat zo'n model werkelijk de voorkeur verdient. Anderzijds kan men dan ook niet stellen, dat de quantummechanische beschrijving door de feiten bevestigd wordt.

De gemiddelde dichtheid van de vrije energie (I.5.8) is, onder invoering van de gereduceerde ordeparameter  $\psi' \equiv \psi/\psi_0$ , welke wij reëel veronderstellen, te schrijven als:

$$F_m(T, \mathbf{B}) = F_n(T) + \frac{H_c^2}{8\pi} [(\overline{\psi'})^4 - 2(\overline{\psi'})^2 + 2\xi^2 \overline{(\text{grad } \psi')^2}] + \frac{1}{8\pi\lambda^2} \overline{\mathbf{A}^2} (\overline{\psi'})^2 + \frac{\mathbf{B}^2}{8\pi} , \quad (\text{I.6.1})$$

hetgeen met de in (I.5) vermelde relaties is na te gaan.



Figuur I.7

De gereduceerde ordeparameter van het lagenmodel als functie van de plaats.

Van Beelen en Gorter maken nu de volgende veronderstellingen:

- de gereduceerde ordeparameter verloopt tussen de normale lagen trapeziumvormig (figuur I.7), waarbij het maximum  $\psi'_m$ , de helling  $\psi'_m/v$  en de afstand tussen de normale lagen,  $d$ , veldafhankelijk zijn;
- het veld tussen de lagen verloopt exponentieel met een gecorrigeerde penetratiediepte,  $\lambda \rightarrow \lambda/\psi'_m$ , op grond van de relatie (I.5.22):  $\lambda^2 \sim 1/n_{s,e}$ . Indien de inductie in de  $z$ -richting wordt verondersteld,  $\mathbf{B}(x) = (0, 0, B(x))$ , en de lagen dus evenwijdig aan het  $y, z$ -vlak genomen worden, leidt dit tot:

$$B(x) = B_n \frac{\cosh\left(\frac{\psi'_m x}{\lambda}\right)}{\cosh\left(\frac{\psi'_m d}{2\lambda}\right)}, \quad (\text{I.6.2})$$

waarin  $B_n$  de inductie in de normale lagen ( $\psi' = 0$ ) is en  $x = 0$  midden tussen de normale lagen wordt genomen;

- de waarde van  $v$  wordt bepaald door minimalisatie van de tweede term in het rechter lid (I.6.1) ten opzichte van  $v$ . Hieruit volgt:

$$v = \sqrt{3} \xi [2 - 1,2 (\psi'_m)^2]^{-\frac{1}{2}}; \quad (\text{I.6.3})$$

- voor de magnetische bijdrage in de vrije energie wordt  $\psi'$  gelijk aan  $\psi'_m$  genomen in de hele laag, hetgeen uit de veronderstelling (b) reeds op te maken viel. Dit betekent, dat voor de magnetische vectorpotentiaal genomen wordt  $\mathbf{A}(x) = (0, A(x), 0)$  met:

$$A(x) = \frac{\lambda}{\psi'_m} B_n \frac{\sinh\left(\frac{\psi'_m x}{\lambda}\right)}{\cosh\left(\frac{\psi'_m d}{2\lambda}\right)}. \quad (\text{I.6.4})$$

Ten gevolge van deze aannamen kan de relatie (1.6.1) nu als volgt geschreven worden:

$$F_m(T, B) = F_n(T) + \frac{H_c^2}{8\pi} \left[ (\psi'_m)^4 - 2(\psi'_m)^2 + \frac{{}^{8/3}\sqrt{3}\xi}{d} (\psi'_m)^2 \{2 - 1,2 (\psi'_m)^2\}^{\frac{1}{2}} \right] + \frac{2\lambda}{\psi'_m d} \frac{B_n^2}{8\pi} \operatorname{tgh} \left( \frac{\psi'_m d}{2\lambda} \right). \quad (1.6.5)$$

Om nu het verband tussen  $B_n$  en  $H_e$  te bepalen, beschouwen wij de Gibbs vrije energie:

$$G = F - \frac{BH_e}{4\pi}, \quad (1.6.6)$$

waarin  $B$  de gemiddelde inductie in de supergeleider is.

Minimaliseren van  $G$  ten opzichte van  $B_n$  levert dan:  $B_n = H_e$  en

$$G_m(T, H_e) = G_n(T) + \frac{H_c^2}{8\pi} \left[ (\psi'_m)^4 - 2(\psi'_m)^2 + \frac{\delta \xi}{d} (\psi'_m)^2 \{2 - \varepsilon (\psi'_m)^2\}^{\frac{1}{2}} \right] + \frac{H_e^2}{8\pi} \left[ 1 - \left( \frac{2\lambda}{\psi'_m d} \right) \operatorname{tgh} \left( \frac{\psi'_m d}{2\lambda} \right) \right]. \quad (1.6.7)$$

In de relatie (1.6.7) zijn de coëfficiënten  ${}^{8/3}\sqrt{3}$  en 1,2 vervangen door respectievelijk  $\delta$  en  $\varepsilon$ . Dit is gedaan, enerzijds ter vergelijking van (1.6.7) met de versies van v. Beelen en Gorter – waar in de oorspronkelijke versie  $\delta=2$ ;  $\varepsilon=1$  en in een latere  $\delta=2$ ;  $\varepsilon=1,4$  genomen zijn – anderzijds om door een geschikte keuze van  $\delta$  en  $\varepsilon$  het resultaat in overeenstemming te brengen met de Ginzburg-Landau relatie (1.5.26). Dit laatste lijkt gerechtvaardigd, wanneer wij de veronderstellingen (a) tot en met (d) bekijken. Hiermee hebben wij namelijk al zo veel water in de wijn gedaan, dat wij beter het accent kunnen leggen op (1.6.7) zonder meer, als een handige relatie om het verloop van de magnetisatiekromme in de mengtoestand te berekenen. De waarde ervan zal dan voornamelijk bepaald worden door de overeenstemming – die door middel van een keuze van  $\delta$  en  $\varepsilon$  wellicht mogelijk is – met de experimentele resultaten en (of) het vortexmodel.

Bij minimaliseren van (1.6.7) ten opzichte van  $\psi'_m$  en  $d$  krijgen wij:

$$\frac{\delta \xi}{d} = 2 \frac{\{1 - (\psi'_m)^2\} \{2 - \varepsilon (\psi'_m)^2\}^{\frac{1}{2}}}{\{3 - 2\varepsilon (\psi'_m)^2\}} \quad (1.6.8)$$

en:

$$H_e^2 = H_c^2 \frac{\delta \xi}{d} (\psi'_m)^2 \{2 - \varepsilon (\psi'_m)^2\}^{\frac{1}{2}} \left\{ \left( \frac{2\lambda}{\psi'_m d} \right) \operatorname{tgh} \left( \frac{\psi'_m d}{2\lambda} \right) - 1 + \operatorname{tgh}^2 \left( \frac{\psi'_m d}{2\lambda} \right) \right\}^{-1}. \quad (1.6.9.)$$

Uit (I.6.9) kunnen nu  $H_{c1}$  en  $H_{c2}$  berekend worden:

$$H_{c2} = \lim_{\psi'_m \rightarrow 0} H_e = \frac{8}{3\delta} \kappa H_c \quad (\text{I.6.10})$$

$$H_{c1} = \lim_{\psi'_m \rightarrow 1} H_e = H_c \left\{ \frac{\delta}{2\kappa} (2-\varepsilon)^{\frac{1}{2}} \right\}^{\frac{1}{2}}. \quad (\text{I.6.11})$$

Verder volgt uit de geminimaliseerde Gibbs vrije energie:

$$\mu_{c2} = \frac{1}{\frac{16}{3} (3-\varepsilon) \frac{\kappa^2}{\delta^2} - 1,2}. \quad (\text{I.6.12})$$

De eis, dat voor  $\kappa = 1/\sqrt{2}$ :  $H_{c1} = H_{c2} = H_c$  moet gelden, levert dan dat  $\delta = \frac{4}{3}\sqrt{2}$  en  $\varepsilon = 1\frac{7}{16}$ . In dit geval krijgen wij:

$$H_{c2} = \kappa \sqrt{2} H_c \quad (\text{I.6.13})$$

$$H_{c1} = \frac{H_c}{(\kappa \sqrt{2})^{\frac{1}{2}}} \quad (\text{I.6.14})$$

$$\mu_{c2} = \frac{1}{1,17 (2\kappa^2 - 1,025)}. \quad (\text{I.6.15})$$

Daar bovendien moet gelden, dat voor  $\kappa = 1/\sqrt{2}$ :  $\mu_{c2} = \infty$ , blijkt het dus niet gelukt te zijn een volledige consistentie te bereiken.

Wanneer wij  $\delta = \frac{4}{3}\sqrt{2}$  substitueren in de relatie (I.6.8), vinden wij in de limiet voor  $\psi'_m \rightarrow 0$ , dat  $d \rightarrow 2\xi$ , hetgeen verwacht moet worden.

Ten slotte merken wij nog op, dat de tweede versie van v. Beelen en Gorter zeer dicht bij de onze ligt.

## 7. HET FLUXOÏDMODEL

De quantisatie van de flux in de mengtoestand, zoals die optreedt bij de supergeleiders van de tweede soort (zie de discussie van  $q$  in (I.6)) leidde Abrikosov<sup>27</sup> ertoe een regelmatig rooster van fluxoïds te beschouwen. Hij koos hiervoor een regelmatig vierkant rooster, waarbij in ieder vierkant zich een fluxquantum bevindt. Een soortgelijke afleiding als in (I.6) leverde – afgezien van de relatie (I.5.27) – voor  $H_{c1}$  (voor grote waarden van  $\kappa$ ):

$$H_{c1} = \frac{H_c \ln \kappa}{\kappa \sqrt{2}} \quad (\text{I.7.1})$$

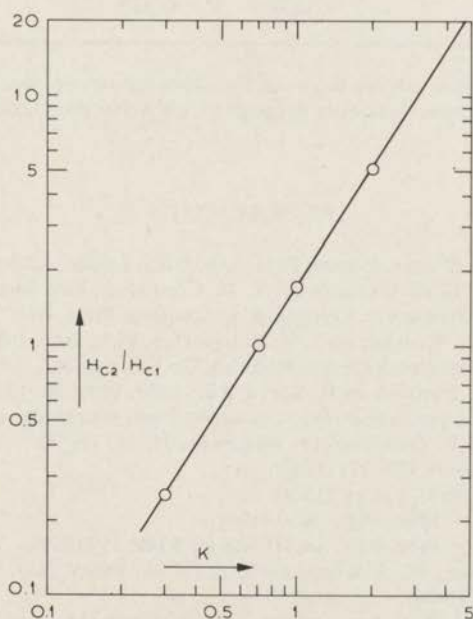
en voor de helling van de magnetisatiekromme bij  $H_{c2}$ :

$$\mu_{c2} = \frac{1}{1,18 (2\kappa^2 - 1)}. \quad (\text{I.7.2})$$

Het hoeft geen verwondering te wekken, dat deze opvatting van de fluxverdeling in de mengtoestand de aanleiding is geweest tot meer gedetailleerde beschouwingen. Bij voorbeeld is nagegaan of een andere verdeling der fluxoïds energetisch voordeliger zou zijn. Matricon<sup>28)</sup>; Kleiner e.a.<sup>29)</sup> en Eilenberger<sup>30)</sup> toonden aan, dat een driehoekige verdeling der fluxoïds inderdaad tot een iets lagere Gibbs vrije energie leidde, hetgeen tot uitdrukking kwam in  $\mu_{e2}$  (vergelijk I.4.11 en 12):

$$\mu_{e2} = \frac{1}{1,16 (2 \kappa^2 - 1)} \quad (I.7.3)$$

Een voor ons belangrijk resultaat werd verkregen door Harden en Arp<sup>31)</sup>, die, voor kleine  $\kappa$ -waarden, door numeriek oplossen van de Ginzburg-Landau vergelijkingen in geval van een vortexstructuur het verband tussen  $H_{c1}$  en  $(H_e, H_{c2})$  bepaalden. In figuur (I.8) is het resultaat  $-H_{c2}/H_{c1}$  als functie van  $\kappa$  grafisch weergegeven.



Figuur I.8

Het verband tussen de Ginzburg-Landau-parameter ( $\kappa$ ) en het quotiënt van het tweede en eerste kritische veld, volgens de berekeningen van Harden en Arp.

Vergelijken wij nu de resultaten van het fluxoïdmodel met die van het – wat wij gemakshalve blijven noemen – lagenmodel, dan valt ons op, afgezien natuurlijk van het verband tussen  $H_{c2}$  en  $H_e$ , dat de helling van de magnetisatiekromme door beide modellen practisch gelijk wordt gegeven. Voor het laagste

kritische veld  $H_{c1}$  blijkt echter, dat voor een groot gebied van  $\kappa$ -waarden ( $4 < \kappa < 25$ ) de  $H_{c1}$  uit het lagenmodel ongeveer 1,6 à 1,7 maal zo groot is als die uit het fluxoïdmodel, bij gelijke  $H_{c2}$  en  $H_c$ .

Vergelijken wij beide modellen met de eerder genoemde waarnemingen van Finnemore e.a. aan zuiver Nb (zie tabel I, waarin de op drie verschillende manieren bepaalde  $\kappa$ -waarden vergeleken worden), dan blijkt enerzijds, dat het fluxoïdmodel tot een meer consistent resultaat leidt (de  $\kappa$ -waarden dienen namelijk gelijk te zijn) dan het lagenmodel, doch anderzijds blijken de verschillen niet zo groot te zijn.

TABEL I

	$\kappa (H_{c2}, H_c)$	$\kappa (\mu_{c2})$	$\kappa (H_{c2}, H_{c1}; H_{c1}, H_c)$
fluxoïdmodel	0,78	0,78	0,79
lagenmodel	0,78	0,78 <sup>6</sup>	0,82 <sup>6</sup>

Vergelijking der resultaten van het lagen- en fluxoïdmodel met de waarnemingen aan zuiver Nb van Finnemore; tussen haakjes is aangegeven uit welke grootheden de  $\kappa$ -waarden bepaald zijn.

REFERENTIES

- 1) H. Kamerlingh Onnes, Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden, 120b; 122b (1911).
- 2) B. T. Matthias, T. H. Geballe en V. B. Compton, Rev. Mod. Phys. **35**, 1 (1963).
- 3) B. W. Roberts, Progress in Cryogenics **4**, Academic Press, New York, 159 (1964).
- 4) J. Bardeen, L. N. Cooper en J. R. Schrieffer, Phys. Rev. **108**, 1175 (1957).
- 5) E. A. Lynton, Superconductivity, Methuen, Co Ltd. London (1962), 110.
- 6) T. Kinsel, E. A. Lynton en B. Serin, Rev. Mod. Phys. **36**, 105 (1964).
- 7) D. Shoenberg, Superconductivity, University Press, Cambridge (1960), 14.
- 8) W. Meissner en R. Ochsenfeld, Naturwiss. **21**, 787 (1933).
- 9) C. J. Gorter, Nature **132**, 931 (1933).
- 10) W. Tuyn, Proefschrift, Leiden (1924).
- 11) C. J. Gorter, Rev. Mod. Phys. **36**, 3 (1964).
- 12) F. en H. London, Proc. Roy. Soc. (London) **A149**, 71 (1935).
- 13) L. W. Shubnikow, W. J. Kotkevich, J. D. Shepelev en J. N. Riabinin, Phys. Z. Sowjet **10**, 165 (1936).
- 14) D. K. Finnemore, T. F. Stromberg en C. A. Swenson, Phys. Rev. **149**, 231 (1966).
- 15) C. J. Gorter en H. B. G. Casimir, Physica **1**, 306 (1934).
- 16) P. Ehrenfest, Leiden Comm. Suppl. 75b; Proc. Kon. Ac., Amsterdam **35**, 736 (1932).
- 17) B. B. Goodman, C. R. Acad. Sci., Paris **258**, 5175 (1964); Phys. Letters **12**, 6 (1964).
- 18) C. J. Gorter, Leiden Comm. Suppl. 124c (1967).
- 19) A. B. Pippard, The Elements of Classical Thermodynamics, University Press, Cambridge (1957).
- 20) C. J. Gorter en H. B. G. Casimir, Phys. Z. **35**, 963 (1934); Z. Techn. Phys. **15**, 539 (1934).
- 21) L. D. Landau en E. M. Lifshitz, Statistical Physics, Clarendon Press, Oxford (1938).
- 22) V. L. Ginzburg en L. D. Landau, Zh. Eksperim. i Teor. Fiz. **20**, 1064 (1950); Phys. Abh. Sov. Un. Folge **1**, 7 (1958).



- 23) P. G. de Gennes, *Superconductivity of Metals and Alloys*, W. A. Benjamin, Inc, New York en Amsterdam (1966).
- 24) M. Tinkham, *Phys. Rev.* **129**, 2413 (1963).
- 25) L. P. Gorkov, *Zh. Eksperim. i Teor. Fiz.* **37**, 1407 (1959); [Engelse vert.: *Soviet Phys.-J.E.T.P.* **10**, 593, 998 (1960)].
- 26) H. van Beelen en C. J. Gorter, *Leiden Comm. Suppl.* 121a; *Physica* **29**, 896 (1963).
- 27) A. A. Abrikosov, *Zh. Eksperim. i Teor. Fiz.* **32**, 1442 (1957); [Engelse vert. *Soviet Phys.-J.E.T.P.* **5**, 1174 (1957)].
- 28) J. Matricon, *Phys. Letters* **9**, 289 (1964).
- 29) W. H. Kleiner, L. M. Roth en S. H. Autler, *Phys. Rev.* **133**, A1226 (1964).
- 30) G. Eilenberger, *Z. für Physik* **180**, 32 (1964).
- 31) V. L. Harden en V. Arp, *Cryogenics* **3**, 105 (1963).

Faint, illegible text at the top of the page, possibly a header or introductory paragraph.

Second block of faint, illegible text, appearing to be a separate section or paragraph.

Third block of faint, illegible text, continuing the document's content.

Fourth block of faint, illegible text, possibly containing a list or detailed notes.

Fifth block of faint, illegible text, appearing towards the bottom of the page.

Final block of faint, illegible text at the very bottom of the page.

## Hoofdstuk II

### OPSTELLINGEN EN MEETMETHODEN

#### 1. INLEIDING

In dit hoofdstuk zullen wij de experimentele opstellingen beschrijven, waarmee de door ons gewenste informatie verkregen is omtrent het onomkeerbare verloop van het magnetische moment en de warmte-ontwikkeling in supergeleidend Nb, in uitwendige magneetvelden. Deze beschrijving heeft voornamelijk betrekking op de toestand, zoals deze bij de laatste experimenten bestond. De discussie van de resultaten hiervan vormen namelijk het belangrijkste bestanddeel van dit proefschrift. Voor zover de resultaten van eerder uitgevoerde experimenten genoemd worden, hopen wij met een korte aanduiding de experimentele situatie te kunnen schetsen, onder verwijzing naar het hier behandelde.

Zoals in paragraaf (I.1) reeds is opgemerkt, beschouwen wij de keuze van het Nb-draad als een gelukkige. Aan het preparaat, bestaande uit dit materiaal, zijn namelijk alle hystereseverstijnselen waargenomen, die – in mindere of meerdere mate – waargenomen kunnen worden aan andere supergeleiders van de tweede soort, die hun „onomkeerbaar gedrag” ontleen aan inhomogeniteiten in het kernmateriaal.

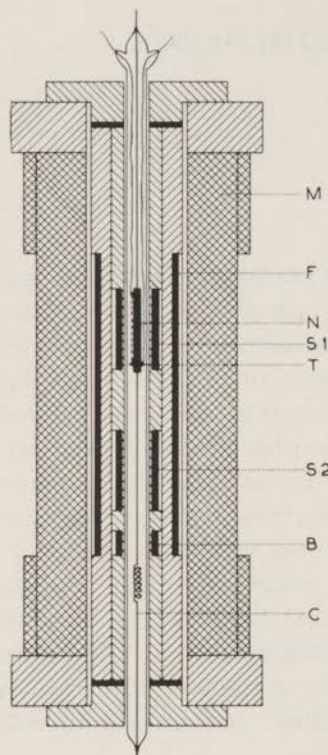
Ten slotte zij vermeld dat slechts het geval van een bundel draden in een axiaal veld is beschouwd, waarbij de totale diameter van de bundel klein is ten opzichte van de lengte. In dit geval is de invloed van het ontmagnetiserende veld te verwaarlozen, terwijl tevens de hystereseverstijnselen (hoofdstuk V) zwakker zijn dan in het geval van een massief staafje met hetzelfde oppervlak van doorsnee.

#### 2. HET PREPARAAT

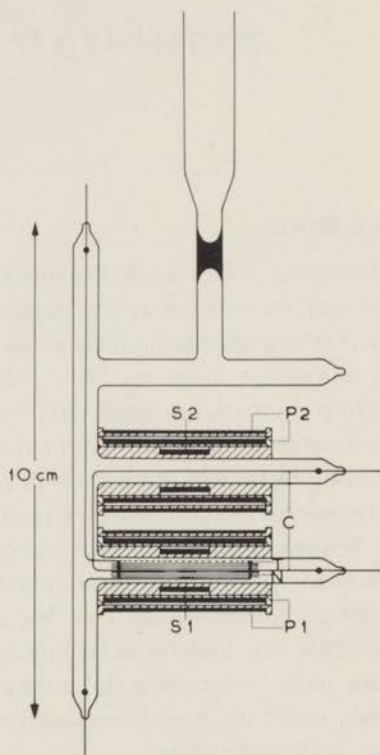
Zoals reeds is opgemerkt werd het Nb-draad aan ons afgestaan door één der werkgroepen van het laboratorium. Deze groep beschikte over twee haspels met Nb-draad, behorend tot eenzelfde zending.

Wij bespreken de resultaten van twee preparaten: het preparaat Nb(I) bevat draad van de ene haspel, terwijl voor Nb(II) draad van de andere haspel gebruikt is.

Houden wij deze nomenclatuur verder aan, dan geldt voor Nb(II), dat het bestaat uit honderd evenwijdige draden van 3,3 cm lengte; de diameter van het draad is 0,01 cm. Deze draden zijn door middel van celluloselak aan elkaar en aan een constantaandraad – welke zich als een doorlopende draad ongeveer in het midden van de bundel bevindt – gekit.



Figuur II.1a



Figuur II.1b

Wijze, waarop het preparaat is aangebracht, wanneer het magneetveld wordt verkregen door een spoel (1a; in dit geval de supergeleidende spoel) en wanneer gemeten wordt in het veld van een ijzermagneet (1b)

M niobium-zirconiumspool  
 S<sub>1</sub>, S<sub>2</sub> meetspoelen  
 B balansspoel  
 F spoel voor veldmeting

N bundel niobiumdraden  
 T koolthermometer  
 C constantaandraad  
 P<sub>1</sub>, P<sub>2</sub> primaire spoelen voor susceptibiliteitsmeting (X')

De functie van de constantaandraad is tweeledig:

1) die van montagedraad, zoals uit de figuren (II.1a en 1b) blijkt;

- 2) die van stookdraad; een elektrische stroom door de constantaandraad zal het preparaat opwarmen, zodat waarnemingen bij temperaturen boven het kookpunt van He mogelijk zijn.

Daar het preparaat is aangebracht binnen een gesloten glazen buisje, waarin zich He-gas bevindt met een druk van ongeveer 1 cm Hg bij kamertemperatuur, mag men verwachten dat de temperatuur in het preparaat vrijwel homogeen is. De warmtegeleiding van het preparaat mogen wij immers veronderstellen, veel beter te zijn dan die van het He-contactgas. Op grond hiervan nemen wij aan, dat de temperatuur van de koolthermometer, die op het oppervlak van de bundel geschilderd is (zie de figuren II.1a en 1b), representatief is voor het gehele preparaat.

### 3. BEPALING VAN DE MAGNETISATIEKROMME

Twee in tegengestelde zin gewikkelde spoeltjes – elk met een lengte van 1 cm en 4000 windingen – zijn aangebracht om het glazen buisje waarin zich het preparaat bevindt (zie de figuren II.1a en 1b:  $S_1$  en  $S_2$ ). Een ervan is gesitueerd om het midden van het preparaat; de ander op voldoende afstand hiervan om geen invloed te ondervinden van het magnetische moment van het Nb. Beide spoeltjes bevinden zich in het homogene gedeelte van het aangelegde magneetveld  $H_e$ . Daar zij in serie verbonden zijn (figuur II.2), zal de verandering van de omvatte flux  $\Phi$  bij variatie van  $H_e$  gegeven worden door:

$$\Delta\Phi = s \Delta B + (S_1 - s) \Delta H_e - S_2 \Delta H_e, \quad (\text{II.3.1})$$

waarin:  $S_1$  en  $S_2$ , de totale windingsoppervlakken zijn van de beide spoeltjes;  
 $s$ , de totale doorsnede van de Nb-draadjes, vermenigvuldigd met het aantal windingen van  $S_1$  en  
 $B$ , de gemiddelde magnetische inductie in het Nb, zijn.

Uit (II.3.1) volgt, dat wanneer  $S_1$  gelijk is aan  $S_2$ :

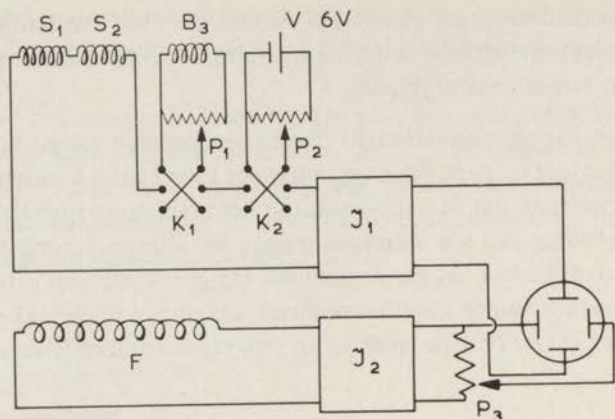
$$\Delta\Phi = s \cdot \Delta 4\pi M. \quad (\text{II.3.2})$$

Ten einde deze situatie te realiseren, is het spoeltje B (figuur II.1a), met oppervlak  $S_3$ , aangebracht – in geval van figuur (II.1b) is het op een van de polen van de electromagneet bevestigd – en zoals is aangegeven in figuur (II.2) opgenomen in de inductieketen. Hierdoor kan nu, als het ware,  $S_2$  gecorrigeerd worden, zodat:

$$S_1 = S_2 \pm \eta S_3, \quad (\text{II.3.3})$$

waarbij de grootte van  $\eta$  bepaald wordt door de stand van de potentiometer  $P_1$  en het teken door de commutator  $K_1$ .

Uit figuur (II.2) blijkt tevens, op welke wijze het verloop van het magnetische moment als functie van  $H_e$  kan worden waargenomen:

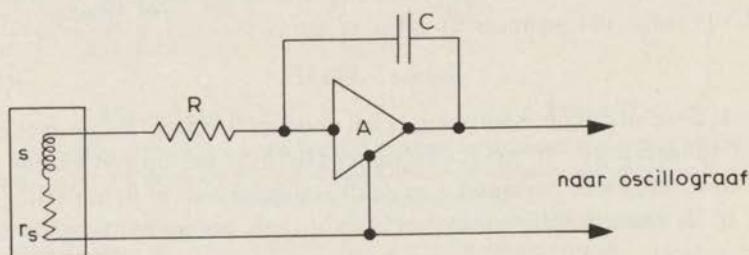


Figuur II.2

Schema voor de meting van de magnetisatiekromme. De betekenis van de symbolen wordt in de tekst gegeven; voor de beide integratoren ( $\mathcal{I}_1, \mathcal{I}_2$ ) wordt de aanduiding  $\mathcal{I}$  gebruikt.

- de inductiespanning  $-(d\Phi/dt)$ , welke het gevolg is van de variatie van  $H_e$ , wordt via het integratienetwerk  $\mathcal{I}_1$  toegevoerd aan de verticale versterker van een dubbelstraaloscillograaf;
- de inductiespanning over een vierde spoel F ( $S_F \approx 5 \cdot 10^4 \text{ cm}^2$ ), eveneens in het homogene deel van  $H_e$ , wordt via de integrator  $\mathcal{I}_2$  en de potentiometer  $P_3$  – voor de aanpassing aan de schaalverdeling (bij voorbeeld 1 kOe komt overeen met een uitslag van 1 of 2 cm op het scherm van de oscillograaf) – toegevoegd aan de horizontale versterker van de oscillograaf.

Hierdoor is dus de verticale uitwijking evenredig met het magnetische moment  $4\pi M$  en de horizontale met  $H_e$ .



Figuur II.3

Schema van de integratoren.

Voor de beide integratoren – waarvan  $\mathcal{I}_1$  op de elektronische afdeling van dit laboratorium is gebouwd met behulp van een Dymac operationele versterker, type Dy-2460 A, en  $\mathcal{I}_2$  deel uitmaakt van een magnetometer, type J, van

Newport Instruments – geldt dezelfde schematische voorstelling, weergegeven in figuur (II.3). De te gebruiken gevoeligheden van de oscillograaf worden bepaald door de integratiefactor  $\mathcal{I}$ :

$$\mathcal{I} \equiv \frac{\Delta V}{\Delta \Phi} = \frac{1}{A(R+r_s)C}, \quad (\text{II.3.4})$$

waarin:  $\Delta V$ , de verandering van de uitgangsspanning van de integrator is ten gevolge van  $\Delta \Phi$ ;

A, de versterkingsfactor van de in  $\mathcal{I}$  gebruikte versterker;

$(R+r_s)$ , de totale ingangsweerstand ( $r_s$ , de weerstand van het spoelensysteem) en

C, de capaciteit van de condensator zijn.

In tabel II zijn de verschillende grootheden vermeld.

TABEL II

Integrator	A	R(M $\Omega$ )	$r_s$ (M $\Omega$ )	C( $\mu$ F)	$\mathcal{I}$ (sec $^{-1}$ )	S(cm $^2$ )	$\Delta \Phi$ (Gcm $^2$ )	Gebruikte Schaal van de Oscillograaf
$\mathcal{I}_1$	$5 \cdot 10^7$	$10^{-2}$	$15 \cdot 10^{-6}$	1	$\sim 2 \cdot 10^{-6}$	$\sim 30$	$3 \cdot 10^4$	10–20 mV.cm $^{-1}$
$\mathcal{I}_2$	$\sim 10^8$	0,45	$50 \cdot 10^{-6}$	1	$\sim 2 \cdot 10^{-8}$	$\sim 50 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^7$	0,5–1 V.cm $^{-1}$

Een storend effect, dat bij het gebruik van integratoren optreedt, is het mee-integreren van in de keten aanwezige thermospanningen. Dit effect is veel belangrijker dan het normale spanningsverval van de integrator ( $\tau = 1/\mathcal{I}$  is ongeveer 11 dagen voor  $\mathcal{I}_1$  en ongeveer 3 jaar voor  $\mathcal{I}_2$ ).

Door het opnemen van een accu in de keten voor de integrator (zie figuur II.2) kan met behulp van de potentiometer P $_2$  en de commutator K $_2$  dit effect merendeels worden onderdrukt. Bij de integrator  $\mathcal{I}_2$  is deze instelmogelijkheid in het instrument ingebouwd.

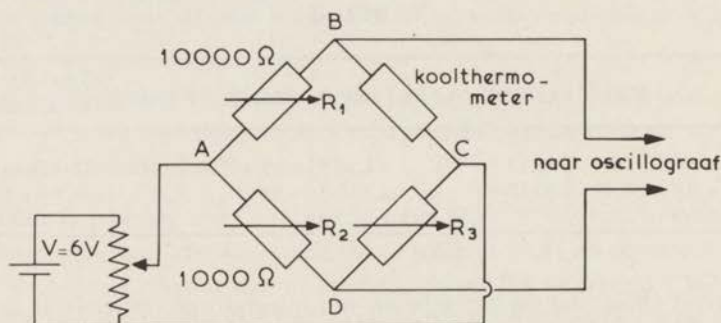
#### 4. BEPALING VAN HET TEMPERATUURVERLOOP

Zoals bij de thermodynamische behandeling van de supergeleiders van de tweede soort in het vorige hoofdstuk naar voren is gekomen, kan bij variatie van  $H_e$  – wanneer de supergeleider zich in de mengtoestand bevindt – zowel kou als warmte worden ontwikkeld; afhankelijk van het toe- of afnemen van  $H_e$ . In hoeverre het verloop van  $dQ/dH_e$ , zoals dit is aangegeven in figuur (I.4), zich zal wijzigen indien het magnetisatieproces niet omkeerbaar is, is het onderwerp van onze onderzoeken.

Op grond van de in paragraaf (II.2) reeds gemaakte veronderstelling, dat de warmtegeleiding van het preparaat ( $\lambda_p$ ) veel beter is dan die van het He-contactgas ( $\lambda(\text{He})$ ) mogen wij aannemen, dat de temperatuur ( $T_0 + \Delta T$ ) van het preparaat – met inbegrip van de koolthermometer – ten gevolge van de warmteontwikkeling ( $dQ/dt$ ) homogeen is. Hierbij zij opgemerkt, dat  $T_0$  de temperatuur van het preparaat is, indien  $H_e$  constant gehouden wordt. De temperatuurverandering ( $\Delta T$ ), welke het gevolg is van  $dQ/dt$ , wordt gegeven door:

$$\Delta T = (2 \pi \bar{l} \bar{\lambda}(\text{He}))^{-1} \cdot (dQ/dt) \cdot \ln(r_b/r_p), \quad (\text{II.4.1})$$

waarin:  $\bar{l}$ , de effectieve lengte van het preparaat bij de warmte-uitwisseling;  
 $\bar{\lambda}(\text{He})$ , de gemiddelde warmtegeleidingscoëfficiënt van het contactgas en  
 $r_b$  en  $r_p$  respectievelijk de stralen van het glazen buisje en het preparaat zijn.



Figuur II.4

Schema van de Wheatstonebrug voor de registratie van de temperatuur gedurende het magnetiseren van het preparaat.

Door de koolthermometer op te nemen in een Wheatstonebrug (figuur II.4), kan het verloop van de temperatuur als functie van  $H_e$  en  $dH_e/dt$  worden waargenomen. Wordt namelijk, bij  $H_e=0$  en  $dH_e/dt=0$ , de brug in evenwicht gebracht, dan zal bij toename van het magnetveld in het gebied tussen  $H_{c1}$  en  $H_{c2}$  een spanningsverschil  $\Delta V$  optreden tussen de punten B en D als gevolg van de weerstandsverandering  $\Delta R_k$  van de koolthermometer. Uit de, in figuur (II.4) weergegeven, schakeling blijkt het verband tussen  $\Delta R_k$  en  $\Delta V$  te zijn:

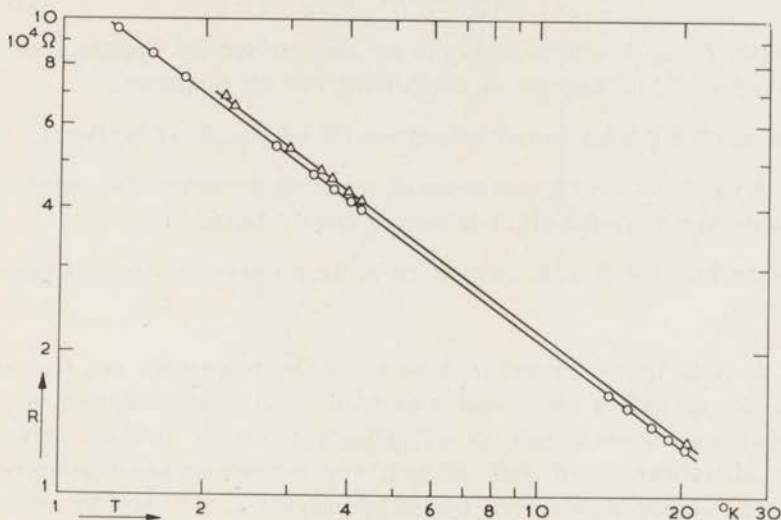
$$\Delta V = \frac{-R_2 R_s \Delta R_k}{R_s(R_k + R_1)(R_2 + R_3) + R_k R_2(R_k + R_1 + R_2 + R_3)}, \quad (\text{II.4.2})$$

waarbij de betekenis der symbolen, afgezien van de inwendige weerstand ( $R_s$ ) van de oscillograaf, uit de figuur blijkt.

Indien nu  $\Delta V$  wordt toegevoerd aan de verticale versterker van de tweede straal van de oscillograaf, terwijl de horizontale besturing dezelfde is als bij



de magnetisatiemeting (paragraaf II.3), krijgen wij een indruk van het temperatuurverloop. Om hieruit het werkelijke verloop van  $\Delta T$  te kunnen bepalen – en zodoende het verloop van  $dQ/dt$  (zie relatie II.4.1) – moeten wij het verband tussen  $R_k$  en  $T$  kennen.



Figuur II.5

De weerstand van de koolthermometer als functie van de temperatuur voor twee verschillende meetdagen.

De calibratie van de koolthermometer ( $R_k$ ) geschiedt in het temperatuurgebied van vloeibaar He en H<sub>2</sub>. In figuur (II.5) is het resultaat van zulk een calibratie weergegeven; zoals er uit blijkt is het verband tussen  $\log R_k$  en  $\log T$  lineair en kan de relatie daarom eenvoudig worden geschreven als:

$$R_k(T) = R_k(1)T^c; \quad 1^\circ\text{K} < T < 20^\circ\text{K} \quad (\text{II.4.3})$$

met in de gegeven gevallen:  $R_k(1) = 1,18 \cdot 10^5 \Omega$ ;  $c = -0,75$  en  $R_k(1) = 1,21 \cdot 10^5 \Omega$ ;  $c = -0,74$ .

Het gevonden verband (II.4.3) maakt het mogelijk om uit (II.4.2) de volgende uitdrukking voor  $\Delta T$  te verkrijgen:

$$\Delta T \approx \frac{(R_k + R_1)(R_2 + R_3)}{R_k R_2} \cdot \frac{\Delta V}{V} \frac{T_0}{|c|}, \quad (\text{II.4.4})$$

waarbij zij opgemerkt, dat (II.4.2) vereenvoudigd kon worden wegens de relatief grote waarde van  $R_s$  ( $\approx 10^6 \Omega$ ).

Indien de verschillende grootheden in (II.4.1) voldoende nauwkeurig bekend zijn, kan uit het gevonden verloop van  $\Delta T$  dat van  $dQ/dt$  berekend worden. Ten einde een en ander na te gaan, voerden wij het volgende experiment uit:

- a) terwijl  $H_e$  constant gehouden wordt, brengen wij de brug in evenwicht;  
 b) vervolgens wordt een stroom ( $I_s$ ) door de constantaandraad geleid, zodat de warmte-ontwikkeling in het preparaat gegeven wordt door:

$$dQ/dt = I_s^2 \cdot R_{c,eff.}, \quad (\text{II.4.5})$$

waarin  $R_{c,eff.}$  de weerstand is van het gedeelte van de constantaandraad, dat effectief bijdraagt tot de verwarming van het preparaat;

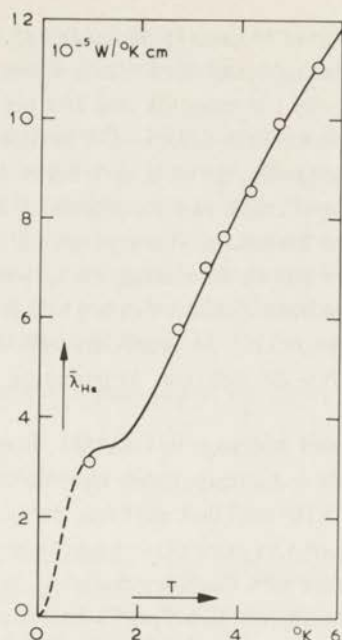
- c)  $\Delta V$  wordt afgelezen en met behulp van (II.4.4) wordt  $\Delta T$  berekend;  
 d) de brug wordt weer gecompenseerd en uit de gevonden  $\Delta R_k$  wordt door middel van de grafiek (II.5) de waarde van  $\Delta T$  bepaald;  
 e) de stroom  $I_s$  wordt afgezet en de brug wordt weer in evenwicht gebracht.

Door de reeks (b) tot en met (e) voor verschillende waarden van  $I_s$  – zo gekozen, dat de erdoor veroorzaakte waarden van  $\Delta V$  overeenkomen met die, welke wij waarnemen tijdens het magnetisatieproces – te herhalen, verkrijgen wij de calibratiekrommen, welke nodig zijn om het verloop van de temperatuur en van de warmte-ontwikkeling tijdens het magnetiseren te bepalen; namelijk  $\Delta V$  als functie van  $\Delta T$  en  $\Delta V$  als functie van  $I_s^2$ .

De reden om zowel in (c) als in (d) de waarde van  $\Delta T$  te bepalen was, om na te gaan of de relatie (II.4.4) bij de uitwerking van de resultaten gebruikt kon worden. Zoals te verwachten was, bleek dit bij niet te lage waarden van  $T_o$  het geval te zijn. Bij lage  $T_o$  is de warmte-ontwikkeling in het Nb groot en de warmtegeleiding van het contactgas vrij slecht.

Een interessant resultaat wordt verkregen door uit de relatie (II.4.1) de warmtegeleidingscoëfficiënt van het He-gas te berekenen. Nemen wij voor  $\bar{l}$  de werkelijke lengte van het preparaat (3,3 cm) en stellen wij de waarde van  $\ln(r_b/r_p)$  gelijk aan één ( $r_b \approx 0,19$  cm;  $r_p \approx 0,07$  cm), dan vinden wij een redelijke overeenstemming tussen de hier berekende  $\bar{\lambda}(\text{He})$  en die, welke door Fokkens<sup>1)</sup> bepaald zijn (zie figuur II.6). Voor de berekening van  $dQ/dt$  moesten wij een keuze doen voor de waarde  $R_{c,eff.}$  (zie relatie II.4.5). De beste aanpassing aan de resultaten van Fokkens werd verkregen voor  $R_{c,eff.} \approx 0,38 \Omega$ , hetgeen in redelijke overeenstemming zal blijken te zijn met de, in hoofdstuk IV, bepaalde waarde van  $R_{c,eff.}$

Er rest ons nu nog enige opmerkingen te maken betreffende de metingen bij temperaturen boven de temperatuur van het He-bad ( $T_b$ ). De instelling van  $T_o$  geschiedt door middel van een stroom door de constantaandraad, zoals reeds is opgemerkt in paragraaf (II.2). Hieruit volgt dan met betrekking tot het bovenstaande, dat in (II.4.5)  $I_s^2$  vervangen moet worden door  $\Delta I_s^2$ ,



Figuur II.6

De warmtegeleidingscoëfficiënt van het He-contactgas als functie van de temperatuur. De getrokken lijn is gebaseerd op de metingen van Fokkens; de door ons bepaalde waarden zijn aangegeven door  $\odot$ .

terwijl ten aanzien van (e) geldt, dat de oorspronkelijke stookstroom weer moet worden ingesteld. Ook zal verwacht mogen worden, dat de temperatuur van het contactgas in deze gevallen zal afwijken van die van het bad. In figuur (II.6) hebben wij de waarden van  $\bar{\lambda}(\text{He})$  dan ook vergeleken met die bij de temperatuur  $(T_o + T_b)/2$ . Uit de figuur blijkt, dat dit tot een bevredigend resultaat leidt.

## 5. DE SUPERGELEIDENDE SPOELMAGNEET

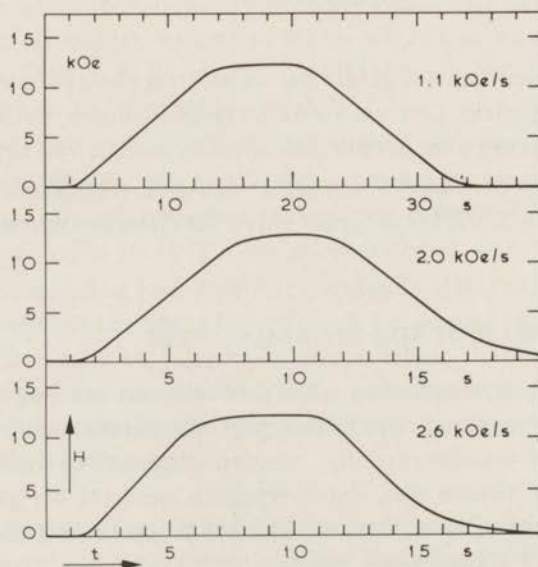
De eerste metingen voerden wij uit in het veld van een met water gekoelde solenoïde van koperdraad. Het bleek echter, dat het maximale veld (4500 Oe) te zwak was; de waarden van  $H_{c2}$  beneden ongeveer  $4,5^\circ\text{K}$  bleken hoger te zijn. Het gevolg hiervan was, dat overgegaan werd tot het gebruik van een electromagneet met ijzeren kern, waarbij het preparaat werd aangebracht op de in figuur (II.1b) aangegeven wijze.

De reeds vermelde snelle ontwikkeling van supergeleidende materialen, die weerstandsloos zijn tot in sterke magneetvelden bij doorvoer van grote elektrische stroomdichtheden, deed ons besluiten tot de bouw van een super-

geleidende spoelmagneet over te gaan<sup>2)</sup>. Behalve dat hierdoor de gelegenheid geschapen werd enige ervaring op te doen met het praktische gebruik van deze spoelen, verwachtten wij, dat het mogelijk zou zijn het magneetveld te kunnen variëren met een vrijwel constante  $dH_e/dt$ . Dit laatste is namelijk niet zo gemakkelijk met een ijzermagneet en voor ons betekende het een belangrijke vereenvoudiging bij de berekening van de grootte  $dQ/dH_e$ .

De spoel, die tot stand kwam, is weergegeven in figuur (II.1b); de lengte ervan bedraagt 10 cm, terwijl de inwendige en uitwendige diameters respectievelijk 2 en 4 cm zijn. De homogeniteit van het veld is verbeterd door het aanbrengen van extra windingen bij de uiteinden van de spoel. Het gebruikte draad is „Supercon” 3 Nb-Zr met een koperlaagje en een isoleringslaagje van „formvar”.

De veldsterkte in de spoel bedraagt  $944 \text{ Oe A}^{-1}$ , hetgeen gemeten kan worden door integratie van de inductiespanning over de veldspoel F, waarvan het oppervlak ( $S_F$ ) ongeveer  $5 \cdot 10^4 \text{ cm}^2$  bedraagt (zie paragraaf II.3). De benodigde energie wordt geleverd door vier accu's (twee aan twee parallel in serie); terwijl de stroom praktisch lineair met de tijd gevarieerd kan worden door middel van een door een potentiometer („helipot”) bestuurde transistorschakeling. Daar echter het optreden van oscillaties in de trillingsketen, gevormd door de magneetspoel en de condensatoren in de transistorschakeling, door een weerstand parallel aan de spoel moet worden tegengegaan, wordt het lineaire ver-



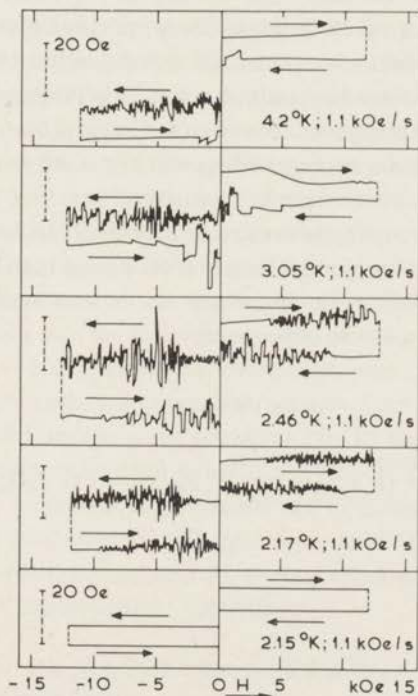
Figuur II.7

Het verband tussen het magneetveld van de Nb-Zr spoel en de tijd, voor verschillende snelheden van de veldregeling.

band tussen het veld en de tijd enigszins bedorven. Dit blijkt uit figuur (II.7), waar het verband tussen het veld en de tijd voor verschillende snelheden is gegeven.

Bij de bepaling van de magnetisatiekromme (zie paragraaf II.3) namen wij een zeer onregelmatig verloop van de kromme, die geacht werd het magnetische moment van het Nb te beschrijven, waar. Op grond van de waarnemingen aan het preparaat in de ijzermagneet, konden deze onregelmatigheden direct worden toegeschreven aan de supergeleidende spoel. Ten einde dit te verifiëren, herhaalden wij de experimenten zonder het Nb-preparaat. Het resultaat hiervan toont, zoals is weergegeven in figuur (II.8), het volgende aan:

- a) het verloop is het meest onregelmatig in het derde kwadrant;
- b) het verschijnsel is sterk afhankelijk van de temperatuur; beneden het lambda-punt is het zelfs verdwenen;



Figuur II.8

De fluctuaties in het veld van de supergeleidende spoel bij vijf verschillende temperaturen; de pijlen geven aan op welke wijze het veld gevarieerd is (te beginnen met een toename van het veld in positieve zin). De sporen op het beeldscherm van de oscillograaf zijn telkens iets naar onder verschoven om het overlappen ervan te vermijden. De verticale gevoeligheid is in de linkerzijde van de figuur aangegeven.

- c) de discontinue variaties in de gemiddelde inductie zijn vrij klein. Nemen wij aan, dat de veranderingen slechts optreden in één der twee spoeltjes  $S_1$  of  $S_2$  (zie relatie II.3.4), dan vinden wij voor de grootste variaties ongeveer 30 Oe. In het geval een fluctuatie plaats vindt in een gebied, dat zich uitstrekt over beide spoeltjes, kunnen wij slechts zeggen, dat de verschillen over dat gebied niet meer bedragen dan 30 Oe.

De waarneming, dat alle discontinuïteiten onmiddellijk verdwijnen beneden het lambda-punt, wijst erop, dat temperatuurstijgingen een voorname rol spelen. Wij veronderstellen, dat de verdeling van de flux binnen de draden van de spoel sterk inhomogeen zal zijn. Wanneer deze verdeling zich zal wijzigen onder invloed van de transportstroom, zullen de draden plaatselijk verhit worden, waardoor lawines kunnen optreden. In het derde kwadrant treedt extra warmte-ontwikkeling op, omdat de in het eerste en tweede kwadrant ingevroren flux vernietigd zal worden door de opnieuw binnendringende flux („annihilatie”). Dit zou dan de oorzaak zijn van het, in dit kwadrant waargenomen, nog onregelmatiger gedrag. Wij hopen door de discussies van de resultaten van het door ons gebruikte Nb-preparaat een duidelijker beeld van deze verschijnselen in supergeleidende spoelmagneten te verkrijgen.

Beneden het lambda-punt wordt een te grote temperatuurtoename voorkomen ten gevolge van de grote warmtegeleiding van het vloeibare He.

De conclusie uit het bovenstaande is, dat men voor het gebruik van Nb-Zr spoelen bij dynamische metingen twee concentrische cryostaten moet gebruiken, waarbij de buitenste de spoel moet bevatten en waarin het He op ongeveer 2°K wordt gehouden; terwijl in de binnenste de experimenten bij verschillende temperaturen kunnen worden uitgevoerd.

#### REFERENTIES

- 1) K. Fokkens, Proefschrift, Leiden (1966).
- 2) S. H. Goedemoed, P. H. Kes, F. Th. A. Jacobs en D. de Klerk, *Physica* **32**, 1978 (1966).

## Hoofdstuk III

### DE EXPERIMENTELE RESULTATEN

#### 1. KORT OVERZICHT

In dit hoofdstuk vermelden wij, op welke wijze uit het directe resultaat van de metingen (het verloop van de geïntegreerde inductiespanningen over het spoelensysteem ( $S_1, S_2$ ) – zie figuur (II.2) – en de spanning over de punten B en D van de Wheatstonebrug – zie figuur (II.4) – als functie van het aangelegde magneetveld) de magnetisatie- en temperatuurkrommen worden verkregen.

Het verloop van deze krommen, met name in het eerste kwadrant, toont twee op het oog betekenisvolle veldwaarden, waarvan wij nagaan of zij gezien kunnen worden als de, in hoofdstuk I gedefinieerde, kritische velden  $H_{c1}$  en  $H_{c2}$ . De afhankelijkheid van de temperatuur van deze veldwaarden leidt onder andere tot de bepaling van de kritische temperatuur  $T_c$ .

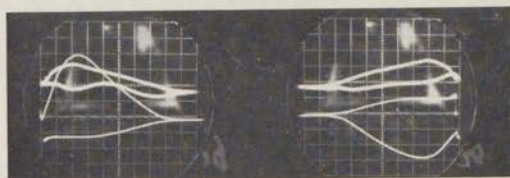
Een vergelijking van de genoemde grootheden met de resultaten van een door De Sorbo uitgevoerd onderzoek naar de gevolgen van het oplossen van  $O_2$  in Nb voor het gedrag van supergeleidend Nb in magneetvelden, leidt tot een interessante gevolgtrekking ten aanzien van het door ons beschouwde Nb.

Ten slotte worden de verschijningsvormen van de fluxsprongen, die bij lagere temperaturen in het preparaat Nb(II) optreden, nader bekeken en onderling vergeleken. Hierbij wordt tevens gebruik gemaakt van een nog niet genoemde mogelijkheid van de experimentele opstelling.

#### 2. BEPALING VAN DE MAGNETISATIEKROMME EN HET TEMPERATUURVERLOOP

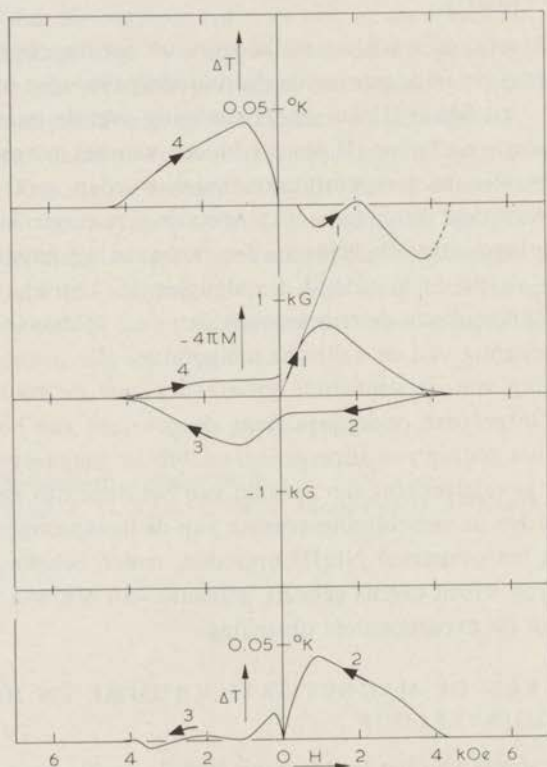
Door het fotograferen van het beeldscherm van de oscillograaf gedurende het variëren van het uitwendig magneetveld  $H_e$  verkrijgen wij op snelle wijze de gegevens over het verloop van het magnetische moment en de temperatuur als functie van  $H_e$  en  $dH_e/dt$ . In de figuren (III.1a, 2a en 3a) is het fotografische resultaat – voor Nb(II) in de in figuur (II.1b) aangegeven situatie – van de

hystereselussen bij respectievelijk de temperaturen  $T_0 = 6,0^\circ\text{K}$ ,  $T_0 = 4,2^\circ\text{K}$  en  $T_0 = 2,3^\circ\text{K}$  gegeven.



Figuur III.1a

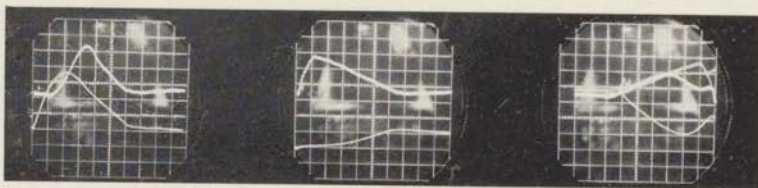
Fotografische opname van het beeldscherm van de oscillograaf gedurende de tijd, dat het magneetveld werd gevarieerd. De temperatuur van het preparaat was ongeveer  $6,0^\circ\text{K}$ . (Links eerste en tweede kwadrant, rechts derde en vierde).



Figuur III.1b

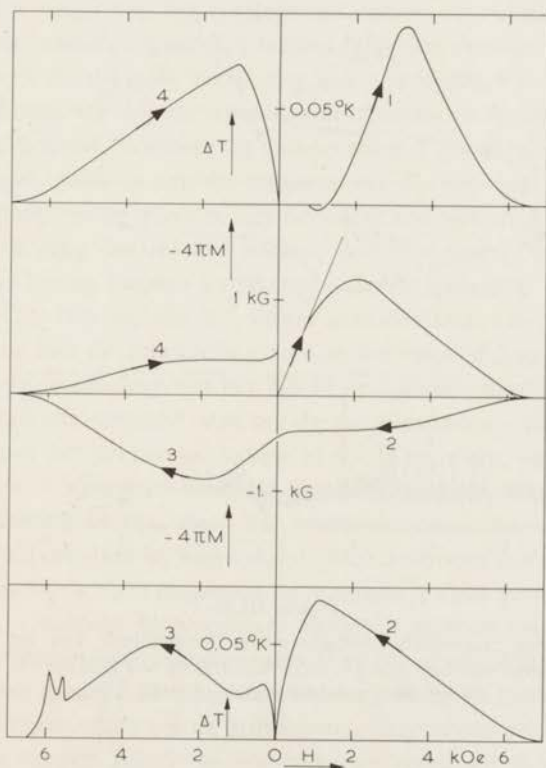
Het verloop van het magnetische moment en de temperatuur van het Nb(II)-preparaat gedurende de variatie van het veld ( $T_0 \approx 6,0^\circ\text{K}$ ;  $dH_e/dt \approx 1 \text{ kOe sec}^{-1}$ ); verkregen uit het fotografisch resultaat, getoond in fig. III.1a.





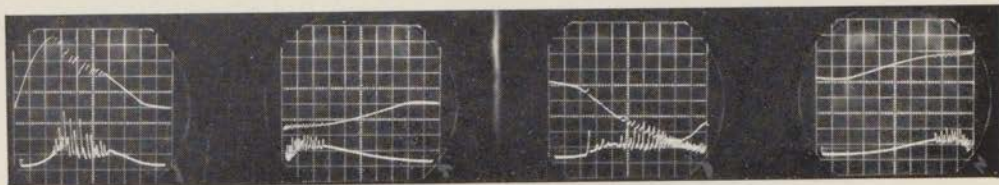
Figuur III.2a

Fotografische opname van het beeldscherm van de oscillograaf gedurende de tijd, dat het magneetveld werd gevarieerd. De temperatuur van het preparaat was  $4,2^\circ\text{K}$ . Links, eerste kwadrant; midden, tweede kwadrant en rechts het derde en vierde kwadrant).



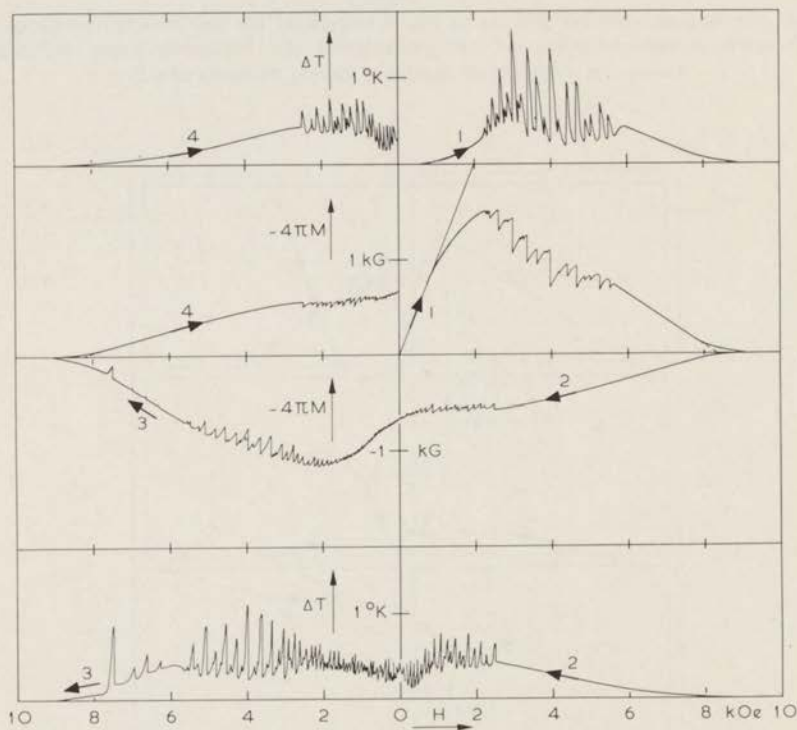
Figuur III.2b

Het verloop van het magnetische moment en de temperatuur van het Nb(II)-preparaat gedurende de variatie van het veld ( $T_0 = 4,2^\circ\text{K}$ ;  $dH_e/dt \approx 1 \text{ kOesec}^{-1}$ ); verkregen uit het fotografische resultaat, getoond in fig. III.2a.



Figuur III.3a

Fotografische opname van het beeldscherm van de oscillograaf gedurende de tijd, dat het magneetveld werd gevarieerd. De temperatuur van het preparaat was  $2,3^{\circ}\text{K}$  (Van links naar rechts 1e, 2e, 3e en 4e kwadrant).



Figuur III.3b

Het verloop van het magnetische moment en de temperatuur van het Nb(II)-preparaat gedurende de variatie van het veld ( $T_0 = 2,3^{\circ}\text{K}$ ;  $dH_0/dt \approx 1 \text{ kOe sec}^{-1}$ ); verkregen uit het fotografisch resultaat, getoond in fig. III.3a.

Om uit deze foto's de magnetisatiekrommen en het temperatuurverloop te construeren dienen wij in eerste instantie het verloop te kennen, wanneer geen magnetisatie van het Nb optreedt en geen warmte in het preparaat wordt ontwikkeld („nullijnen”).

Door het preparaat op te warmen tot boven  $T_c$  en vervolgens  $H_e$  te variëren, verkrijgen wij de nullijnen, die bij de verschillende kwadranten van de hystereselus behoren. Bij de uitwerking gaan wij nu als volgt te werk: nadat het op millimeterpapier geprojecteerde beeld van het eerste kwadrant van de magnetisatiekromme is overgetekend, wordt de bijbehorende nullijn geprojecteerd en wel zodanig, dat het punt ( $4\pi M=0$ ,  $H_e=0$ ) en het gedeelte voor  $H_e > H_{c2}$  van de magnetisatiekromme ermee samenvallen. Voor de andere kwadranten wordt dezelfde methode gevolgd; waarbij wij dienen op te merken, dat tijdens de metingen het punt ( $4\pi M=0$ ,  $H_e=0$ ) na het doorlopen van het tweede (of vierde) kwadrant is verkregen door hier de temperatuur te verhogen tot boven  $T_c$ . Uiteraard wordt dit „schoonstoken” van het preparaat ook steeds gedaan, wanneer wij metingen in het eerste kwadrant willen uitvoeren, daar het de enige mogelijkheid is om een hysteresevrije toestand te verkrijgen. De omrekeningsfactor, die nodig is om het verloop van het magnetische moment als functie van  $H_e$  te bepalen, wordt verkregen uit de hoek tussen het lineaire gedeelte aan het begin van het eerste kwadrant en de nullijn ter plaatse. In dit gebied dringt namelijk geen flux binnen (afgezien van het te verwaarlozen oppervlaktelaagje ter dikte  $\lambda$ ), zodat hier dus  $d4\pi M/dH_e = -1$  moet zijn.

Van de nullijnen, die bij de temperatuurkrommen behoren, zijn eveneens begin en einde bekend. Wanneer de temperatuur  $T_o$ , waarbij het experiment wordt uitgevoerd, gelijk is aan de temperatuur  $T_b$  van het He-bad, maken wij uit het verloop boven  $H_{c2}$  op, dat de weerstand van de koolthermometer afneemt bij verhoging van  $H_e$ . Het verloop is echter gering, zodat wij de nullijnen vrij nauwkeurig kunnen aanbrengen. In de gevallen, waar  $T_o > T_b$  is, (zie figuur III.1a), zien wij dat het verval aanzienlijk is. De oorzaak hiervan schrijven wij toe aan de verandering van de warmtegeleiding van het Nb. Is namelijk de warmtegeleiding van het Nb in de normale toestand slechter dan in de supergeleidende toestand, dan zal de warmtestroom – in magneetvelden boven  $H_{c2}$  – door het preparaat, loodrecht op de as ervan, kleiner worden en hierdoor zal de temperatuur van de koolthermometer afnemen. Daar de warmte-ontwikkeling in het, door het preparaat omsloten, gedeelte van de constantaandraad constant is, wordt dus de warmtestroom buiten het preparaat om groter. Daar wij hebben nagelaten de nullijnen in deze gevallen experimenteel te bepalen – hetgeen bij voorbeeld mogelijk geweest was door de veldregeling gedurende het magnetisatieproces af en toe even stil te zetten – moeten wij proberen deze zo goed mogelijk aan te brengen. Bij de discussies in de volgende hoofdstukken zullen wij de argumenten naar voren brengen, die tot de volgende keuze hebben geleid: de nullijn in het eerste kwadrant verloopt op dezelfde wijze als in die gevallen, waarbij  $T_o = T_b$ , afgezien van het gedeelte vlak bij de overgang naar de normale toestand, waar hij geleidelijk, doch vrij steil afvalt om in de normale toestand samen te vallen met het waargenomen verloop. In de andere kwadranten verloopt de nullijn, geleidelijk afvallend, in

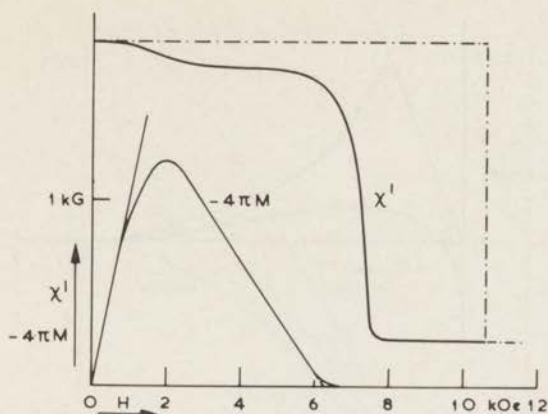
het gehele gebied van  $H_e=0$  tot waar de normale toestand optreedt; waarbij de raaklijn aan de nullijn bij  $H_e=0$  samenvalt met die in het eerste kwadrant, terwijl zij bij de overgang naar de normale toestand samenvalt met die van het waargenomen gedeelte.

Zijn op voornoemde wijze de nullijnen aangebracht, dan kan met de in paragraaf (II.4) beschreven calibratie het verloop van  $\Delta T$  bepaald worden. In de figuren (III.1*b*, 2*b*, 3*b*) zijn de uit de foto's verkregen resultaten weergegeven; de discussie ervan vindt plaats in de volgende paragrafen.

### 3. DE KRITISCHE VELDEN $H_{c1}$ EN $H_{c2}$

Zoals in hoofdstuk I besproken is, dienen wij onder het eerste kritische veld van een supergeleider (van de tweede soort) de kleinste waarde van het aangelegde magneetveld te verstaan, waarvoor het energetisch voordeliger is om een zwakke magnetische inductie in het gehele preparaat, bestaande uit dit supergeleidende materiaal, toe te laten. Om dit veld experimenteel waar te kunnen nemen, dient men in eerste instantie een preparaat te beschouwen, waarvoor de ontmagnetiserende velden verwaarloosbaar zijn, terwijl bovendien de dwarsafmetingen ervan veel groter moeten zijn dan de penetratiediepte  $\lambda$  van het beschouwde materiaal. Zelfs wanneer aan deze eisen voldaan is, kan het nog voorkomen, dat men de waarde van het veld, waarbij de fluxpenetratie in het preparaat begint, niet kan identificeren met  $H_{c1}$ . De reden hiervan is het feit, dat de fluxoids zich aan het oppervlak van de supergeleider moeten vormen. Omdat er geen stromen loodrecht op het oppervlak kunnen lopen (zie paragraaf (I.5)), wordt hier het ontstaan van fluxdraden bemoeilijkt. Bean en Livingston<sup>1)</sup> namen bij hun berekeningen aan, dat de fluxdraad wel gevormd wordt, doch dat de wisselwerking met het spiegelbeeld ervan ten opzichte van het oppervlak een naar buiten gerichte kracht veroorzaakt, die de kracht ten gevolge van de veldgradiënt ( $\lambda$ ) aan het oppervlak tegenwerkt. Deze beeldkrachten zijn groter naarmate het oppervlak gladder is. Het gevolg is, dat bij een zeer glad oppervlak de magnetisatiekromme zich lineair kan blijven voortzetten tot boven  $H_{c1}$ .

Om de kwaliteit van het oppervlak der door ons gebruikte Nb-draden te bepalen, hebben wij de magnetische susceptibiliteit  $\chi'$  ( $=d4\pi M/dH_e$ ) gemeten en de resultaten ervan vergeleken met die uit soortgelijke metingen van Strongin e.a.<sup>2)</sup> aan een Pb-Bi preparaat, waarvan het oppervlak zo glad mogelijk was gemaakt. Hieruit bleek (zie figuur III.4), dat reeds voor vrij kleine waarden van  $H_e$  - overeenkomend met die, waar in het eerste kwadrant van de magnetisatiekromme de fluxpenetratie begint - een gedeelte van het aangelegde wisselveld (amplitude  $\approx 1$  Oe; frequenties tussen 70 en 500 Hz) in onze Nb-preparaten doordrong, terwijl bij de metingen van Strongin praktisch totale afscherming werd waargenomen tot  $H_e \approx H_{c3}$  was. Op grond hiervan nemen



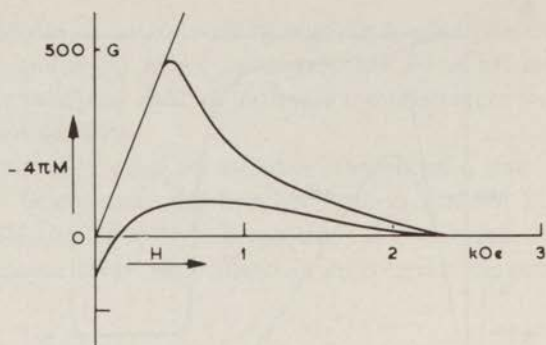
Figuur III.4

De magnetisatiekromme ( $-4\pi M$ ) en het reële deel van de susceptibiliteit ( $\chi'$ ) als functie van het aangelegde magneteveld;  $\chi'$  geeft aan welke fractie van het door de spoelen ( $P_1, P_2$ ) – zie fig. II.1b – gegenereerde wisselveld (amplitude  $\approx 1$  Oe; frequentie tussen 70 en 500 Hz) er niet in slaagt door te dringen in het supergeleidende Nb(II).

wij aan, dat het oppervlak van onze Nb-draden zeer onregelmatig is en dat derhalve de waarde van  $H_{e1}$ , waarvoor in het eerste kwadrant de afgeleide naar  $H_e$  van het magnetische moment van de waarde  $-1$  gaat afwijken, beschouwd kan worden als ongeveer  $H_{c1}$ .

Het tweede kritische veld  $H_{c2}$ , waarbij de gehele supergeleider (afgezien van het oppervlaktelaagje) overgaat in de normale toestand, zouden wij daar moeten nemen, waar het magnetische moment gelijk aan nul wordt. De, opvallende, lineaire gedeelten in de magnetisatiekrommen – zowel in het eerste als in het tweede (en vierde) kwadrant en in mindere mate ook in het derde – bij de hogere veldwaarden, gevoegd bij het feit dat het snijpunt van deze stukken op de  $4\pi M=0$ -as valt, maakt het verkieslijk dit punt als  $H_{c2}$  op te vatten. Het is geenszins uitgesloten, dat de staarten te wijten zijn aan verschillen in de eigenschappen der draden, zodat op voornoemde wijze een soort gemiddelde waarde van  $H_{c2}$  wordt gevonden.

Van het preparaat Nb(I)<sup>3</sup> zijn alleen de magnetisatiekrommen bekend bij temperaturen boven  $5^\circ\text{K}$ , omdat wij voor deze metingen de in paragraaf (II.5) genoemde solenoïde van koperdraad ( $H_{e,max}=4500$  Oe) gebruikten. Daar wij bovendien nog niet de beschikking hadden over de integratoren, bepaalden wij het magnetische moment door in korte tijd (50 msec) het preparaat tot boven  $T_c$  op te warmen<sup>4</sup>). De inductiespanning in het spoelensysteem ( $S_1, S_2$ ) werd gemeten met een ballistische galvanometer, waarvan de eigen slingertijd 15 sec bedroeg, zodat de uitslag evenredig met het magnetische moment was (zie figuur III.5). De evenredigheidsfactor, berekend uit het totale oppervlak van



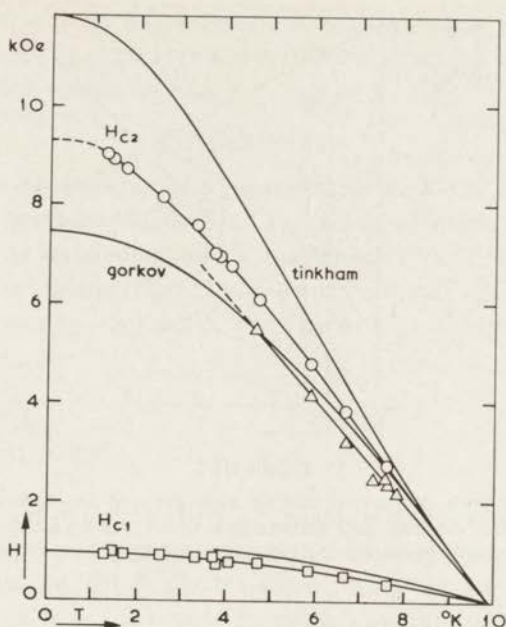
Figuur III.5

De magnetisatiekromme van het Nb(I)-preparaat bij  $T_0 = 7,0^\circ\text{K}$  in het eerste en tweede kwadrant. Dit preparaat bevat 500 Nb-draadjes. De meetpunten (zie tekst) zijn weggelaten.

de dwarsdoorsnede van de Nb-draden, het aantal windingen van de meetspool en de gemeten ballistische gevoeligheid van de galvanometer was binnen een paar procent in overeenstemming met de veronderstelling, dat beneden  $H_{c1}$  in het eerste kwadrant  $d4\pi M/dH_e = -1$  moet gelden. De waarden van  $H_{c1}$  en  $H_{c2}$  worden weer op de hiervoor besproken wijze gelocaliseerd.

Het resultaat voor beide preparaten is weergegeven in figuur (III.6). De verschillen, wat betreft de waarden van  $H_{c1}$ ,  $H_{c2}$  en  $T_c$  zijn gering te noemen, wanneer wij het verloop van de magnetisatiekrommen in ogenschouw nemen. Het is niet geheel duidelijk, wat hiervan de oorzaak is. Daar de draden van beide preparaten van dezelfde zending afkomstig waren, doch van verschillende klossen (zie hoofdstuk II), kan men veronderstellen, dat de twee stukken verschillende behandelingen hebben ondergaan, die geleid hebben tot de waargenomen verschillen. Het resultaat van deze behandelingen zou dan moeten zijn, dat de gemiddelde waarden van de coherentielengte ( $\xi$ ) en de penetratiediepte ( $\lambda$ ) in beide stukken slechts weinig verschillen, doch dat de lokale variaties ervan in de twee gedeelten meer uiteenlopen. Deze laatste worden namelijk geacht verantwoordelijk te zijn voor het vasthouden van de binnengedrongen fluxdraden, hetgeen leidt tot de onomkeerbare processen in veranderende magneetvelden (zie hoofdstuk V).

Ten einde na te gaan hoe groot de verschillen in chemische verontreinigingen waren, vergeleken wij onze resultaten met die van De Sorbo<sup>5)</sup> uit metingen betreffende de invloed van opgeloste gassen, zoals  $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{CO}$  en  $\text{H}_2$  op de karakteristieke grootheden  $H_{c1}$ ,  $H_c$ ,  $H_{c2}$ ,  $T_c$  en de restweerstand (zie figuur III.7). Hieruit kunnen wij met enig voorbehoud besluiten, dat in Nb(I) ongeveer 0,4 at %  $\text{O}_2$  en in Nb(II) ongeveer 0,6 at %  $\text{O}_2$  aanwezig zijn; de invloed van de andere gassen is zo gering, dat zij in ons geval buiten beschouwing konden worden gelaten. Een spectro-chemische analyse van het materiaal, dat



Figuur III.6

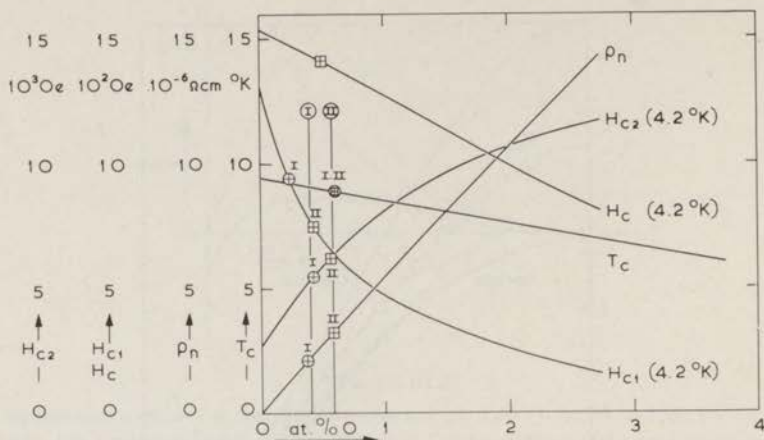
Het fasediagram voor de beide Nb-preparaten; tevens is aangegeven voor Nb(II), op welke wijze  $H_{c2}$  van de temperatuur afhangt volgens Tinkham en Gorkov (zie tekst).  $\Delta$ ,  $H_{c2}$  eerste preparaat;  $\circ$ ,  $H_{c2}$  tweede preparaat; geen meetpunten,  $H_{c1}$  eerste preparaat;  $\square$ ,  $H_{c1}$  tweede preparaat.

afkomstig was van dezelfde haspel als het door ons gebruikte in het Nb(I)-preparaat, heeft Ferreira da Silva <sup>6)</sup> in verband met metingen van de soortelijke warmte laten uitvoeren. De uitkomst van deze analyse bleek in overeenstemming te zijn met onze conclusie, zodat wij geneigd zijn eveneens enige waarde te hechten aan de 0,6 at %  $O_2$  in het Nb(II)-preparaat.

De restweerstand,  $\rho(I) = 2,1 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$  en  $\rho(II) = 3,3 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$ , werden voor ons bepaald door Drs H. J. M. van Rongen van de F.O.M. werkgroep voor het metaalonderzoek. Dit leidt tot waarden voor  $\rho_{300}/\rho_{10}$  van respectievelijk 8 en 5, terwijl deze verhouding voor het zuiverste Nb, dat tot nog toe voor dit soort metingen is gebruikt (Finnemore e.a.<sup>7)</sup>) gelijk was aan 2000.

Ten slotte willen wij nog iets opmerken omtrent de afhankelijkheid van  $H_{c1}$  en  $H_{c2}$  van de temperatuur, zoals dit in figuur (III.6) is weergegeven.

Voor  $H_{c1}$  blijkt een parabolisch verloop met de temperatuur tot een bevredigende beschrijving te leiden. Met het oog op de spreiding der meetpunten is het niet mogelijk om systematische afwijkingen hiervan te detecteren. Voor het, eerder genoemde, door Finnemore e.a. gebruikte Nb wordt de beste



Figuur III.7

Vergelijking van de beide preparaten met de metingen van De Sorbo (getrokken lijnen), wat betreft het gehalte van eventueel aanwezige zuurstof. De verschillende groottheden van het Nb(I) zijn aangegeven door  $\circ$  en die van het Nb(II) door  $\square$  (zie verder tekst).

aanpassing aan de meetresultaten verkregen met een afhankelijkheid van  $H_{c1}$  van de temperatuur volgens  $(1 - t^{2,13})$ .

Het verloop van  $H_{c2}$  voor het Nb(II) met de temperatuur is vergeleken met dat van  $H_{c2}$  volgens de relaties (I.5.31 en 34). Hierbij is de waarde van het product  $\kappa(1) H_c(0)$  zo genomen, dat  $dH_{c2}/dT$  bij  $T_c$  gelijk is aan die van de experimentele kromme. Het blijkt, dat in dit geval de experimentele kromme ongeveer midden tussen de beide theoretische krommen ligt.

Een, voor ons gevoel, waardevollere informatie is verkregen door de verhouding van de door ons bepaalde waarden van  $H_{c2}$  en die van Finnemore e.a. <sup>7)</sup> als functie van de gereduceerde temperatuur ( $t$ ) te bepalen. Het blijkt, dat deze verhouding gelijk is aan  $2,40 \pm 0,10$  voor alle waarden van  $t$ . Met behulp van relatie (I.5.24) komen wij dan tot:

$$\xi_v^2(t)/\xi_z^2(t) \approx 0,42, \quad (\text{III.3.1})$$

waarin de indices  $v$  en  $z$  respectievelijk betekenen: vuil (of verontreinigd) en zuiver. Beschouwen wij de relaties van Goodman <sup>8)</sup>, geldig voor  $t \lesssim 1$  en  $l \gg \xi_0$ :

$$\xi_z(t) = 0,74 \xi_0 (1-t)^{-1/2} \quad (\text{III.3.2})$$

en die van Caroli e.a. <sup>9)</sup>, geldig voor  $t \lesssim 1$  en  $l \ll \xi_0$ :

$$\xi_v(t) = 0,85 (l\xi_0)^{1/2} (1-t)^{-1/2}, \quad (\text{III.3.3})$$

waarin:  $l$ , de gemiddelde vrije weglengte van de geleidingselectronen in de normale toestand is en

$$\xi_0 = 0,029 \, hv_F/kT_c \quad (\text{III.3.4})$$



de coherentielenkte in de B.C.S.-theorie is ( $h$ , de constante van Planck;  $v_F$ , de gemiddelde snelheid der electronen aan het Fermi-oppervlak en  $k$ , de constante van Boltzmann) dan vinden wij voor  $t \lesssim 1$  en  $l \ll \xi_0$ , dat:

$$\xi_v^2(t)/\xi_z^2(t) = l/\xi_0 \quad (\text{III.3.5})$$

onafhankelijk van de temperatuur is in het aangegeven kleine gebied. Op grond van de door ons gevonden relatie (III.3.1) zouden wij willen concluderen, dat ook voor  $l \approx \xi_0$ , de verhouding der  $\xi$ 's onafhankelijk van  $t$  is. Veronderstellen wij, dat in dit geval relatie (III.3.5) ook toepasbaar zou zijn, dan krijgen wij voor  $l \approx 180 \text{ \AA}$ , waarbij voor  $\xi_0$ , de door Finnemore opgegeven waarde van  $430 \text{ \AA}$  gebruikt is.

#### 4. DE FLUXSPRONGEN

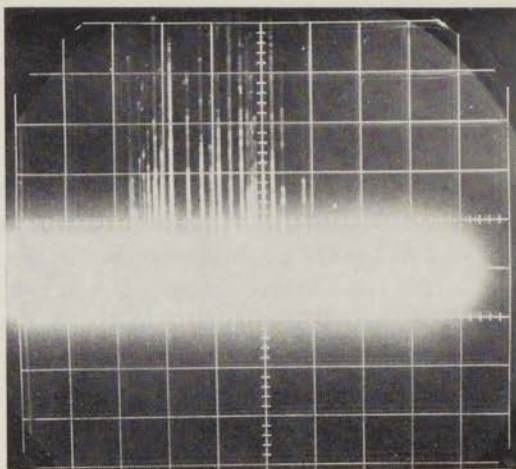
In de figuren (III.3a en b) nemen wij<sup>10</sup>) in bepaalde gebieden van de magnetisatiekromme discontinue veranderingen waar. In het eerste en derde kwadrant geven deze veranderingen aan, dat de dichtheid der fluxoïds in het Nb stootsgewijs toeneemt, terwijl zij er in het tweede en vierde kwadrant op wijzen, dat deze plotseling afneemt. In het derde kwadrant kunnen deze „fluxsprongen” – zoals wij ze zullen noemen – aangemoedigd of versterkt worden, doordat de binnendringende flux de in het tweede kwadrant ingevroren flux ontmoet; beiden zullen dan worden vernietigd („fluxannihilatie”) en de vrijkomende warmte kan het optreden van een lawine bevorderen.

Beschouwen wij de bijbehorende temperatuurkrommen, dan zien wij dat tijdens de fluxsprongen een aanmerkelijke hoeveelheid warmte in het preparaat ontwikkeld wordt, hetgeen waargenomen wordt aan de scherpe pieken, die dan optreden. Dit was wel te verwachten, daar door de geïnduceerde spanningen ten gevolge van de snelle verplaatsing der fluxdraden, stromen van normale electronen gegenereerd zullen worden.

Behalve op de twee genoemde manieren kunnen wij de fluxsprongen nog op een derde wijze demonstreren; namelijk door het spoelensysteem ( $S_1$ ,  $S_2$ ) direct op de oscillograaf aan te sluiten. Het resultaat is weergegeven in figuur (III.8); de fluxsprongen worden nu geregistreerd als scherpe pieken tot ongeveer 0,5 V. Wij noemen deze methode van meten, de „Barkhausen-methode” en de sprongen, die op deze wijze worden waargenomen, de „quasi-Barkhausensprongen”.

Zonder ons thans te verdiepen in de oorzaken, die tot de fluxsprongen leiden, willen wij ons in deze paragraaf slechts de volgende vragen stellen:

- 1) in welke gebieden ( $H_e$ ,  $T$ ) treden de fluxsprongen op;
- 2) in welke tijden spelen de processen zich af;
- 3) bestaat er een verband tussen de fluxsprongen in de magnetisatiekrommen,

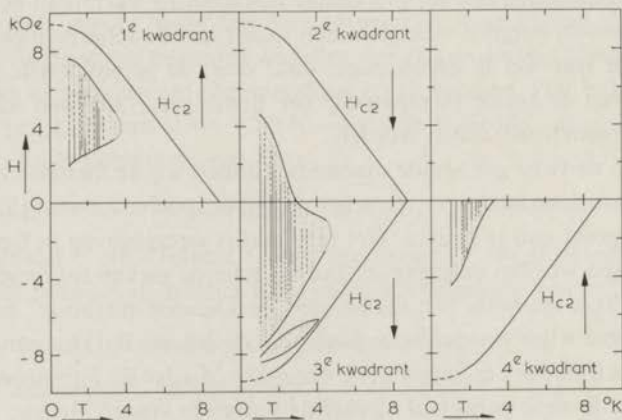


Figuur III.8

Foto van de quasi-Barkhausensprongen in het eerste kwadrant bij  $T_0 = 2,3^\circ\text{K}$ .

de ermee gepaard gaande pieken in de temperatuur en de quasi-Barkhausensprongen?

De gebieden, waar de fluxsprongen optreden, zijn eenvoudig aan te geven. Dit is gedaan in figuur (III.9), waarbij wij aantekenen, dat wanneer de hystereselus verschillende malen wordt doorlopen, de individuele sprongen niet precies



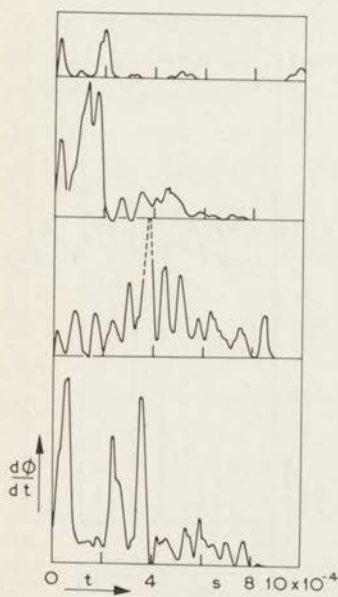
Figuur III.9

Gebieden in het  $H, T \sim$  diagram, waar fluxsprongen optreden, aangegeven voor de vier kwadranten van de hystereselus. Punten: individuele sprongen; onderbroken lijnen: sprongen dicht bij elkaar; getrokken lijnen: sprongen zeer dicht bij elkaar. Het verschil tussen dicht en zeer dicht is enigszins subjectief.

gereproduceerd worden (hoewel wij de indruk hebben, dat enkele van de grotere sprongen herhaaldelijk bij ongeveer dezelfde veldwaarde worden teruggevonden); de gebieden echter, waar de sprongen optreden zijn precies dezelfde.

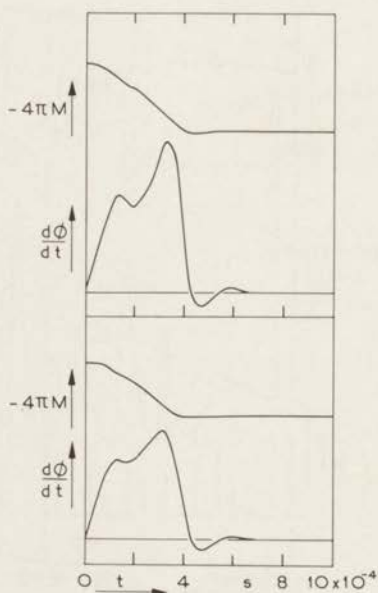
Ten einde iets te kunnen zeggen omtrent de tijden, waarin de processen zich afspelen, zijn de quasi-Barkhausensprongen gefotografeerd, waarbij de tijdbasis van de oscillograaf  $10^{-4}$  sec  $\text{cm}^{-1}$  was. Het resultaat in figuur (III.10) toont, dat de sprongen veelvoudig zijn. Hieruit concluderen wij, dat meerdere draden bij een sprong betrokken zijn en dat het erop lijkt, alsof een fluxsprong een lawine van secundaire sprongen teweeg kan brengen; vermoedelijk door thermische of magnetische koppeling met de omliggende draden. Aan de andere kant blijken er aanmerkelijke veldintervallen te bestaan tussen de sprongen, waarin geen detecteerbare discontinue fluxpenetratie plaats vindt.

In onze eerste experimenten werden de quasi-Barkhausensprongen waargenomen als gedempte trillingen met een eigentrillingstijd van ongeveer  $6 \cdot 10^{-5}$  sec, hetgeen overeenkwam met de resonantie-hoekfrequentie van het spoelensysteem ( $S_1, S_2$ ) ten gevolge van parasitaire capaciteiten. In de latere experimenten werd deze trillingskring meer kritisch gedempt door een weerstand over de ingang van de oscillograaf te schakelen. Wanneer nu de duur van een fluxsprong



Figuur III.10

De quasi-Barkhausensprongen bij  $1,0^\circ\text{K}$ ; de tijdbasis van de oscillograaf bedraagt  $10^{-4}$  sec  $\text{cm}^{-1}$ .

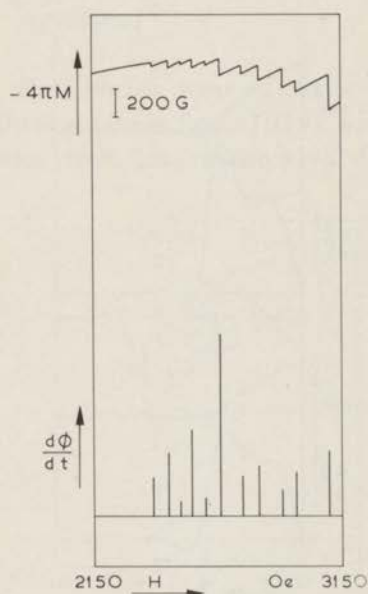


Figuur III.11

Gelijktijdige opname van de quasi-Barkhausensprong en het verloop van het magnetische moment bij  $3,5^\circ\text{K}$  (hier treedt slechts één sprong op in het eerste kwadrant).

kort is, vergeleken met de eigen trillingstijd van de zo gevormde trillingskring, zien wij op het beeldscherm van de oscillograaf het verloop van de, door de fluxsprongen geïnduceerde, spanningen. Beschouwen wij dan de figuren (III.10 en 11), waar het verloop van de quasi-Barkhausensprongen met de tijd wordt gegeven – bij respectievelijk 1,0 en 3,5°K – gedurende de veldregeling, dan zouden wij op grond van het verschil in structuur kunnen concluderen, dat de fluxsprongen zich bij lagere temperaturen in een langere tijd voltrekken dan bij de hogere temperaturen; bij 3,5°K is blijkbaar de gehele structuur ineen gevloeid. Uit figuur (III.11) blijkt uit het doorslingeren aan het einde van de kromme, dat de trillingstijd ten gevolge van de weerstand ongeveer  $2 \cdot 10^{-4}$  sec geworden is. Het feit, dat het – tegelijkertijd met de quasi-Barkhausensprong waargenomen – verloop van  $\Delta 4\pi M$  een structuur vertoont, die geassocieerd kan worden met die van  $d\Phi/dt$ , lijkt erop te wijzen dat de structuur van de quasi-Barkhausensprong inderdaad overeenkomt met de inductiespanning. Meer waarschijnlijk echter is, dat het verloop van  $\Delta 4\pi M$  op dezelfde wijze is beïnvloed door de trillingstijd van de kring als  $d\Phi/dt$ .

Wanneer wij aannemen, dat de tijd waarin een fluxsprong zich voltrekt hoogstens  $10^{-4}$  sec is, betekent dit dat de snelheid waarmee het fluxfront zich



Figuur III.12

Het gelijktijdige verloop van het magnetische moment en de quasi-Barkhausensprongen in het gebied tussen 2150 en 3150 Oe van het eerste kwadrant van de hystereselus bij 2,3°K.



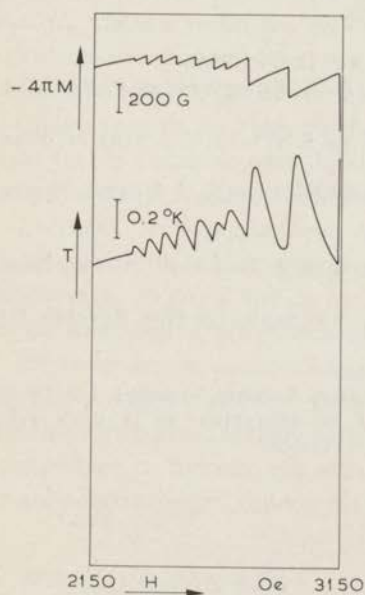
Fig. III.14.

Het gelijktijdige verloop van de temperatuur en de quasi-Barkhausensprongen in het gebied tussen 2150 en 3150 Oe van het eerste kwadrant van de hystereselus bij 2,3°K.

verplaatst gemiddeld groter is dan  $50 \text{ cmsec}^{-1}$  moet zijn. Hierbij is aangenomen, dat het front zich met constante snelheid verplaatst over de gehele straal van een draad ( $R \approx 10^{-3} \text{ cm}$ ).

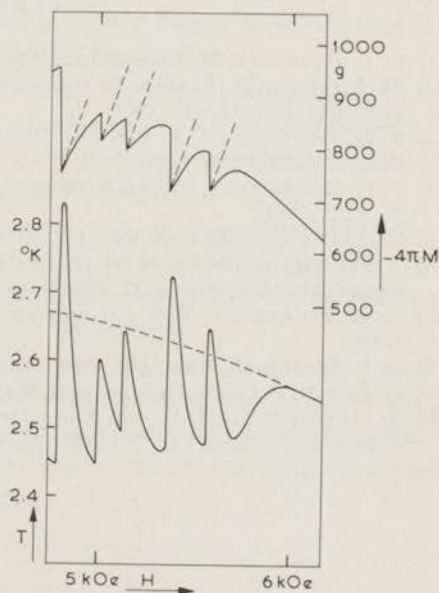
Omdat wij hebben waargenomen, dat de fluxsprongen niet in alle draden tegelijk optreden, mogen wij niet verwachten, dat er een strikte evenredigheid zal bestaan tussen de hoogte van de quasi-Barkhausensprong en de geïntegreerde grootheden  $\Delta 4\pi M$  en  $\Delta T$ . Dit wordt bevestigd in de figuren (III.12 en 13), waar op vergrote schaal bij  $2,3^\circ\text{K}$  respectievelijk de simultane paren  $(d\Phi/dt, \Delta 4\pi M)$  en  $(d\Phi/dt, \Delta T)$  in het begin van het fluxspronggebied in het eerste kwadrant gegeven zijn als functie van  $H_e$ .

Ten aanzien van de beide grootheden  $\Delta 4\pi M$  en  $\Delta T$  zou men wel een verband verwachten. In de figuren (III, 14 en 15) zijn beiden – simultaan gemeten – gegeven; zowel aan het begin als aan het einde van het fluxspronggebied bij  $2,3^\circ\text{K}$ . Een groot aantal van dit soort opnamen is geanalyseerd om na te gaan of er een evenredigheid bestond. Voor de kleine sprongen werd een aanmerkelijke spreiding waargenomen, maar voor de grote werd bij  $2,3^\circ\text{K}$  een waarde van ongeveer  $1,9^\circ\text{K kG}^{-1}$  gevonden, ongeacht in welk kwadrant de sprongen optraden. De waarnemingen bij  $1,03^\circ\text{K}$  leidden tot ongeveer dezelfde waarde



Figuur III.14

Het gelijktijdige verloop van het magnetische moment en de temperatuur in het gebied tussen 2150 en 3150 Oe van het eerste kwadrant van de hystereselus bij  $2,3^\circ\text{K}$ .



Figuur III.15

Het gelijktijdige verloop van het magnetische moment en de temperatuur in het gebied tussen 4750 en 6150 Oe van het eerste kwadrant van de hystereselus bij  $2,3^\circ\text{K}$ .

voor  $\Delta T/\Delta 4\pi M$  als bij  $2,3^\circ\text{K}$ . Dat er een spreiding optreedt voor de waarden van  $\Delta T/\Delta 4\pi M$  in geval van de kleinere fluxsprongen kan het gevolg zijn van het feit, dat de responsie van de koolthermometer afhankelijk is van de plaats, waar de fluxsprong zich voltrekt in het preparaat.

De hoeveelheid warmte, die bij een fluxsprong vrijkomt kan gecalibreerd worden door een condensator te ontladen door de constantaandraad. De ontladingen vinden plaats in ongeveer  $30 \mu\text{sec}$ . De temperatuursprongen, die tengevolge hiervan door de koolthermometer worden geregistreerd, lijken zeer veel op die welke de fluxsprongen begeleiden. Het blijkt, dat de hoeveelheid energie, corresponderend met een sprong van  $0,7^\circ\text{K}$  voor lage waarden van  $H_e$  in het eerste en derde kwadrant overeenkomt met ongeveer 400 erg en bij de hoge waarden met ongeveer 700 erg. De overeenkomstige waarden voor sprongen van  $0,4^\circ\text{K}$  in het tweede (en vierde) kwadrant zijn 200 en 300 erg. De verschillen tussen deze waarden kunnen wij wellicht toeschrijven aan de afhankelijkheid der soortelijke warmte van de fluxdichtheid. Het is echter moeilijk tot een schatting te komen, daar het isolatiemateriaal en het kitmiddel in het preparaat in rekening moeten worden gebracht.

#### REFERENTIES

- 1) C. P. Bean en J. D. Livingston, *Phys. Rev. Lett.* **12**, 14 (1964).
- 2) M. Strongin, A. Paskin, D. G. Schweitzer, O. F. Kammerer en P. P. Craig, *Phys. Rev. Lett.* **12**, 442 (1963).
- 3) S. H. Goedemoed, A. van der Giessen, D. de Klerk en C. J. Gorter, *Phys. Letters* **3**, 250 (1963).
- 4) S. H. Goedemoed, C. van Kolmeschate, D. de Klerk en C. J. Gorter, *Physica* **30**, 1225 (1964).
- 5) W. De Sorbo, *The Phys. Rev.* **132**, 107 (1963).
- 6) J. Ferreira da Silva, N. W. J. van Duykeren en Z. Dokoupil, *Comm. Kam. Onnes Lab.* 348*b*; *Physica* **32**, 1183 (1966).
- 7) D. K. Finnemore, T. F. Stromberg en C. A. Swenson, *The Phys. Rev.* **149**, 231 (1966).
- 8) B. B. Goodman, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 12 (1964).
- 9) C. Caroli, P. G. De Gennes en J. Matricon, *Phys. Kondens. Materie* **1**, 176 (1963).
- 10) S. H. Goedemoed, C. van Kolmeschate, J. W. Metselaar en D. de Klerk, *Comm. Kam. Onnes Lab.* No 342*b*; *Physica* **31**, 573 (1965).

## Hoofdstuk IV

### THERMODYNAMISCHE BESCHOUWINGEN BIJ DE ONOMKEERBARE MAGNETISATIEPROCESSEN

#### 1. TER ORIËNTATIE

Gelijktijdige meting van het magnetische moment en de warmte-ontwikkeling, tijdens de variatie van het aangelegde magneetveld, stelt ons in staat enige thermodynamische beschouwingen te houden<sup>1) 2) 3)</sup>. Het resultaat ervan – gepresenteerd in de volgende paragrafen – is, dat wij een aanvaardbare waarde van  $H_e$  kunnen verkrijgen en bovendien het, door Gorter<sup>4)</sup> geformuleerde, criterium voor het optreden van fluxsprongen kunnen toetsen.

De waarneming, dat de warmte-ontwikkeling recht evenredig is met  $dH_e/dt$  – althans voor de door ons beschouwde waarden tussen 500 en 2500 Oe  $\text{sec}^{-1}$  – leidt tot de conclusie, dat  $dQ/dH_e$  voor de genoemde waarden van  $dH_e/dt$  niet afhankelijk is van de snelheid, waarmee  $H_e$  gevarieerd wordt.

Eveneens is waargenomen, dat de vorm van de magnetisatiekrommen onafhankelijk is van de waarde van  $dH_e/dt$  in de beschouwde gevallen. Dit mocht men, op grond van de wet van behoud van energie, ook wel verwachten na de waarneming betreffende  $dQ/dH_e$  (en omgekeerd).

De voornoemde waarnemingen betreffen natuurlijk niet de gebieden, waar de fluxsprongen optreden. Indien echter deze gebieden niet te groot zijn, kunnen wij op aanvaardbare wijze zowel de magnetisatie- als de warmtekromme interpoleren en hiermee een schatting verkrijgen omtrent het verloop, indien er geen fluxsprongen zouden plaats vinden.

#### 2. BEPALING VAN $H_c$

Daar de magnetische enthalpie ( $E = U - MH$ ) van het systeem in de normale toestand voor  $H_e \geq H_{c2}$  uiteraard gelijk is aan die voor  $H_e \leq -H_{c2}$ , moet er gelden dat de totaal door  $H_e$  verrichte arbeid gelijk is aan de totale hoeveelheid warmte, die aan het bad wordt afgestaan wanneer  $H_e$  van  $+H_{c2}$  naar  $-H_{c2}$  wordt gevarieerd, of:

$$\mathcal{V} \int_{H_e}^{-H_e} \overline{M} dH_e = \int_{H_e}^{-H_e} \left( \frac{d\overline{Q}}{dt} \right) \left( \frac{dt}{dH_e} \right) dH_e ; \quad (\text{IV.2.1})$$

hierin zijn:  $\mathcal{V}$ , het volume van de Nb-draden in het preparaat ( $\sim 0,0259 \text{ cm}^3$ ) en  $d\overline{Q}/dt$ , de warmte-ontwikkeling in het preparaat (negatief genomen indien zij leidt tot een temperatuuroename van het preparaat).

De relatie (IV.2.1) levert ons de mogelijkheid om de reeds genoemde (hoofdstuk II) effectieve weerstand van de constantaandraad ( $R_{c,eff}$ ) te bepalen. Wij identificeren dan namelijk de op de foto's waargenomen  $\Delta V \sim$  kromme – waaruit in paragraaf (III.2) het verloop van de temperatuur tijdens het doorlopen van de hystereselus werd bepaald – met een  $\Delta I_s^2 \sim$  kromme ( $I_s$  is de stroom door de constantaandraad) zodanig, dat  $\Delta V$  ten gevolge van het variëren van  $H_e$  gelijk is aan die, welke – in geval  $dH_e/dt=0$  – veroorzaakt kan worden door  $I_s$  te veranderen. Hiervoor maken wij gebruik van de in paragraaf (II.4) besproken calibratie. Door substitutie van  $d\overline{Q}/dt = \Delta I_s^2 \cdot R_{c,eff}$  in relatie (IV.2.1) verkrijgen wij dan:

$$R_{c,eff} = \frac{\mathcal{V} \int_{H_e}^{-H_e} \overline{M} dH_e}{\int_{H_e}^{-H_e} \Delta I_s^2 \left( \frac{dt}{dH_e} \right) dH_e} ; \quad (\text{IV.2.2})$$

het verloop van  $dH_e/dt$  met  $H_e$  wordt afzonderlijk bepaald.

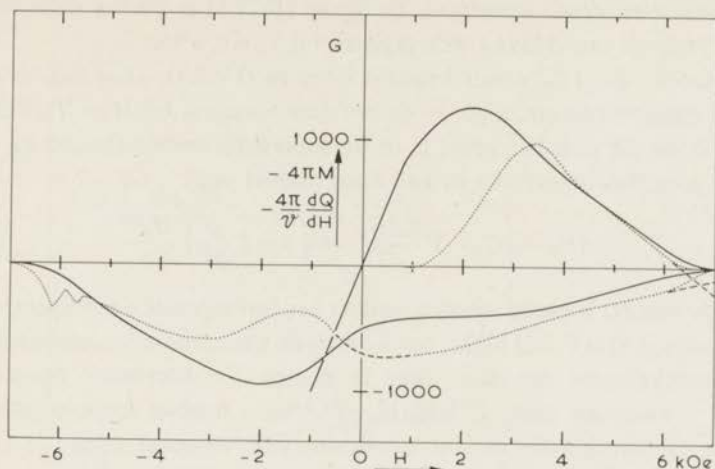
Uit de metingen bij temperaturen tussen 3,5 en 4,2°K, waarbij dus  $T_o = T_b$ , volgt dan voor  $R_{c,eff} = 0,39\Omega \pm 3\%$ . Deze waarde is meer in overeenstemming met die (0,38 $\Omega$ ), waartoe wij in paragraaf (II.4) besloten, dan wij hadden kunnen verwachten op grond van de onzekerheid in de afmetingen van het preparaat en het glazen buisje; de naar alle waarschijnlijkheid niet geheel concentrische plaatsing van het preparaat in het buisje en het verwaarlozen van de warmtegeleiding van laatstgenoemde.

Wanneer eenmaal  $R_{c,eff}$  bekend is, verdient het aanbeveling vanwege de geconstateerde evenredigheid tussen  $d\overline{Q}/dt$  en  $dH_e/dt$  om de warmtekromme ( $\Delta V$ ) weer te geven als  $d\overline{Q}/dH_e \sim$  kromme.

In figuur (IV.1a) is het verloop van  $4\pi\overline{M}$  en ( $4\pi\mathcal{V}$ ) ( $d\overline{Q}/dH_e$ ) in de eerste drie kwadranten van de hystereselus bij 4,0°K getoond. Bij de overgang van het tweede naar het derde kwadrant is de warmtekromme door een stippellijn aangegeven, daar in dit gebied  $dH_e/dt$  niet voldoende nauwkeurig bekend is.

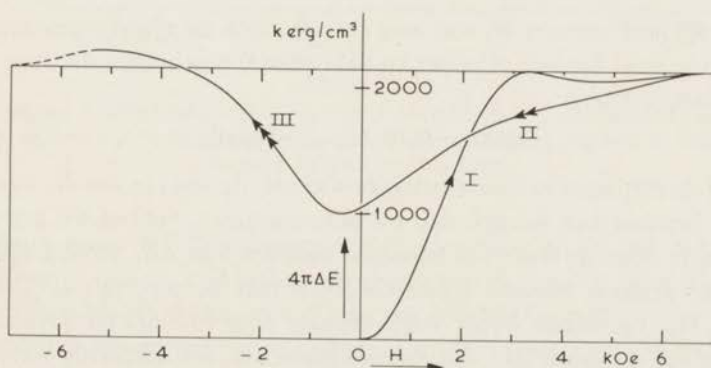
Is het verloop van beide krommen bekend, dan ligt het voor de hand om





Figuur IV.1a

De magnetisatiekromme (—) en de warmtekromme (·····) in de eerste drie kwadranten van de hystereselus bij 4,2°K. Door (-----), bij de overgang van het tweede naar het derde kwadrant, is aangegeven hoe de warmtekromme geïnterpoleerd is. Dit was noodzakelijk door de onnauwkeurigheid van  $dH_e/dt$  in dit gebied.



Figuur IV.1b

De magnetische enthalpie, berekend uit de gegevens van fig. IV.1a door middel van de relaties (IV.2.3 en 4).

dat van de magnetische enthalpie te bepalen. Dit wordt gerealiseerd door:

$$\Delta E(H_e) \equiv E(H_e) - E_s(0) = \int_0^{H_e} \left[ \frac{1}{\gamma} \left( \frac{d\bar{Q}}{dH_e} \right) - \bar{M} \right] dH_e \quad (\text{IV.2.3})$$

in het eerste kwadrant en:

$$\Delta E(H_e) = \Delta E_n + \int_{H_c2}^{H_e} \left[ \frac{1}{\gamma} \left( \frac{d\bar{Q}}{dH_e} \right) - \bar{M} \right] dH_e \quad (\text{IV.2.4})$$

in het tweede en derde kwadrant. In figuur (IV.1.b) is het op deze wijze berekende verloop van  $\Delta E(H_e)$  weergegeven bij  $T_o = 4,0^\circ\text{K}$ .

De waarde van  $\Delta E_n$  wordt bepaald door in (IV.2.3),  $H_e = H_{c2}$ , te nemen. Daar de magnetische enthalpie in de normale toestand bij  $H_e = H_{c2}$  eenduidig bepaald is en dit ook het geval is in de supergeleidende toestand bij  $H_e = 0$ , wanneer geen flux ingevroren is, kan door middel van:

$$\Delta E_n = \Delta G_n - T \frac{d\Delta G_n}{dT} = \left(1 - T \frac{d}{dT}\right) \frac{H_c^2}{8\pi} \quad (\text{IV.2.5})$$

de waarde van  $H_c$  bepaald worden, indien het verloop met de temperatuur van  $H_c$  bekend is. Uit (IV.2.5) blijkt, dat wij aan de waargenomen „omkeerbare” magnetisatiekromme een niet waar te nemen „omkeerbare” magnetisatiekromme – waarvoor geldt  $\int_0^{H_{c2}} M dH_e = H_c^2/8\pi$  – hebben toegevoegd. In het volgende hoofdstuk komt de laatstgenoemde weer ter sprake door de aanname van „locale reversibiliteit”.

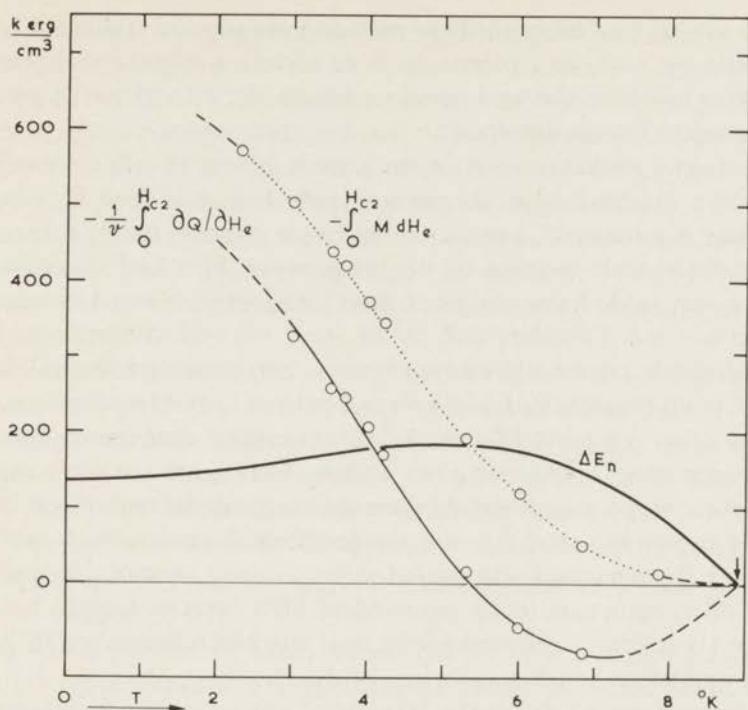
Nemen wij aan, dat  $H_c$  parabolisch afhankelijk is van de temperatuur (zie I.4.9), dan leidt (IV. 2.5) tot:

$$\Delta E_n = \frac{H_c(0)^2}{8\pi} (1 - t^2) (1 + 3t^2) \quad (\text{IV.2.6})$$

In werkelijkheid varieert  $H_c$  niet met  $(1 - t^2)$ , doch de afwijkingen zijn in het algemeen gering. Bardeen, Cooper en Schrieffer<sup>5)</sup> beschrijven dit door middel van de functie  $D_o(t)$ :

$$H_c(t) = H_c(0) (1 - t^2 + D_o(t)). \quad (\text{IV.2.7})$$

Daar uit de metingen van de soortelijke warmte, de waarde van  $H_c$  veel nauwkeuriger bepaald kan worden dan uit onze metingen, hebben wij gemeend er goed aan te doen de door ons bepaalde waarden van  $\Delta E_n$  te vergelijken met die, welke grafisch bepaald kunnen worden met behulp van (IV.2.5 en 7) wanneer  $D_o(t)$  genomen wordt, zoals bepaald door Ferreira da Silva e.a.<sup>6)</sup> uit metingen van de soortelijke warmte van materiaal, dat afkomstig was van dezelfde haspel als ons Nb(1). De overweging, dat  $\Delta E_n$  bepaald wordt door het verschil van de geïntegreerde magnetisatie- en warmtekromme van het eerste kwadrant, waardoor de relatieve fout van  $\Delta E_n$  aanmerkelijk kan worden, bracht ons ertoe eerst gladde krommen door de waarden van de genoemde, geïntegreerde, krommen – als functie van  $T_o$  – aan te brengen en vervolgens de verschilskromme te bepalen zodanig, dat het verloop met de temperatuur van deze kromme in overeenstemming was met (IV.2.7). Zoals uit figuur (IV.2) blijkt, is dit zeer wel mogelijk. Wij dienen hierbij op te merken, dat in de gevallen  $T_o > T_b$ , de nullijnen genomen moeten worden, zoals is aangegeven in hoofdstuk III. Het verloop van de nullijnen in het tweede en derde kwadrant, bij deze temperaturen, is zodanig genomen, dat de waarde van  $R_{c,eff}$  die dan bepaald wordt met behulp van (IV.2.2) gelijk is aan die, wanneer  $T_o = T_b$ .



Figuur IV.2

De waarden van  $-\int_0^{H_{c2}} M dH_e$ ,  $-(1/V) \int_0^{H_{c2}} (\partial Q / \partial H_e) dH_e$  en  $\Delta E_n$  als functie van de temperatuur. Het verloop met de temperatuur van  $\Delta E_n$  is in overeenstemming met de metingen van Ferreira da Silva e.a. (zie tekst).

Uit de in figuur (IV.2) aangegeven  $\Delta E_n \sim$  kromme blijkt dan, dat  $H_c(0) = 1845$  Oe, welke waarde wij kunnen vergelijken met die van het door Finnemore e.a. gebruikte Nb (1933 Oe) en met die van het Nb(I)-draad – door Ferreira da Silva <sup>6)</sup> uit meting van de soortelijke warmte – (1860 Oe). De waarde van  $H_c$  bij 4,2  $^{\circ}\text{K}$  bedraagt ongeveer 1400 Oe, hetgeen eveneens kan wijzen op de aanwezigheid van 0,6 at %  $\text{O}_2$  in het Nb(II) waartoe wij in paragraaf (III.3) door vergelijking van onze metingen met die van De Sorbo (zie figuur III.7) besloten.

### 3. HET FLUXSPRONGCRITERIUM VAN GORTER

Het verloop van de magnetische enthalpie in het eerste kwadrant bij lagere temperaturen ( $T_0 \lesssim 3^{\circ}\text{K}$ ) toont, dat  $\Delta E(H_e) > \Delta E_n$  is voor bepaalde waarden van  $H_e$ . De overeenkomstige gebieden van de magnetisatie- en warmtekrommen tonen juist hier de fluxsprongen.

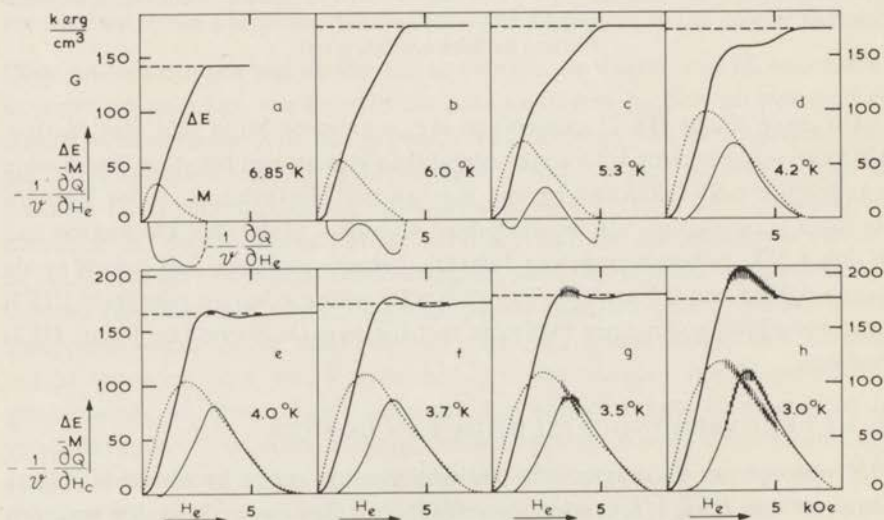
De samenhang tussen de waarde van de magnetische enthalpie en de kans op fluxsprongen was door Gorter als volgt geformuleerd: „Wordt gedurende de

variatie van  $H_e$  en  $T$  de magnetische enthalpie van een supergeleidend lichaam groter dan die, welke de supergeleider in de normale toestand zou hebben, dan is een zeer instabiele toestand ontstaan, waarin vanzelf verloopende processen (fluxsprongen) kunnen optreden”.

Prof. Gorter merkte hierover in een gesprek op, dat in zulk een fluxsprong het systeem van Nb-draden, althans een groot deel ervan, zou kunnen overgaan naar een toestand, waarvan de enthalpie ongeveer gelijk zou zijn aan die van de normale toestand bij die temperatuur. Men kan echter niet verwachten, dat in de korte stoot een geheel homogene toestand ontstaat met magnetisatie nul. Er zullen vlak na de stoot nog wel kringstromen lopen, supergeleidende kernen zijn overgebleven en temperatuurgradiënten optreden zonder dat dit tot enthalpiebijdragen van betekenis leidt. Men mag verwachten dat vervolgens een geleidelijke, doch snelle, terugkeer naar een mengtoestand plaats vindt onder ontwikkeling van warmte, waarbij het niet eenvoudig is te voorspellen, welke waarde het resulterende magnetische moment zal krijgen.

In het tweede kwadrant ligt, ook wat betreft de fluxsprongen, de zaak ingewikkelder. Het is mogelijk, dat ingesloten flux uitbreekt, terwijl in de naaste omgeving de mengtoestand bijna onveranderd blijft bestaan. Ook in het derde kwadrant is de situatie onoverzichtelijk, daar men hier rekening heeft te houden met de annihilatie van flux.

Beschouwen wij nu figuur (IV.3), waarin voor verschillende temperaturen ( $3,0^\circ\text{K} < T_0 < 7,0^\circ\text{K}$ ) het verloop van  $-\bar{M}$ ,  $(1/\mathcal{V})(d\bar{Q}/dH_e)$  en  $\Delta E(H_e)$  in het



Figuur IV.3

Het verloop van het magnetische moment ( $\cdots\cdots\cdots$ ), de grootheid  $(1/\mathcal{V})(d\bar{Q}/dH_e)$  ( $-\cdots-$ ) en de magnetische enthalpie ( $\text{—}$ ) in het eerste kwadrant van de hystereselus bij verschillende temperaturen tussen 3 en  $7^\circ\text{K}$ .

eerste kwadrant is weergegeven, dan zien wij een relatief maximum in  $\Delta E(H_e)$  ontstaan, dat uitgroeit tot een absoluut maximum, naarmate  $T_0$  lager is. Daar, waar  $\Delta E(H_e) > \Delta E_n$  is – rekening houdend met de fout in  $\Delta E(H_e)$  – worden inderdaad de fluxsprongen waargenomen. Voor de berekening van  $\Delta E(H_e)$  in deze gevallen zijn de gebieden, waar de magnetisatie- en warmtekrommen worden onderbroken door de fluxsprongen, zodanig overbrugd, dat zij het meest waarschijnlijke verloop te zien geven, indien de fluxsprongen achterwege zouden blijven. Dit is, zeker voor de magnetisatiekrommen, mogelijk door vergelijking met het verloop ervan bij hogere temperaturen; wanneer de gebieden althans niet te groot zijn.

Voor het verloop van  $\Delta E(H_e)$  in het tweede kwadrant bij deze lage temperaturen kunnen wij verwijzen naar figuur (IV.1.b) met de toevoeging, dat voor de lagere temperaturen  $\Delta E(H_e) > \Delta E_n$  is, in het gebied bij  $H_{e2}$ . Daar de fluxsprongen in dit kwadrant juist optreden voor de lagere waarden van  $H_e$  (zie figuur III.9), waar  $\Delta E(H_e)$  inmiddels weer kleiner is dan  $\Delta E_n$ , lijkt het erop dat er dan sprake is van lokale fluxsprongen, zoals door Gorter gesuggereerd werd. De discontinue veranderingen van  $4\pi M$  zijn hier ook kleiner dan die in het eerste kwadrant.

Resumerend zouden wij willen stellen, dat uit onze metingen gebleken is, dat in het eerste kwadrant het criterium van Gorter inderdaad geldig schijnt te zijn voor het intreden van fluxsprongen. Over de situatie na afloop van de sprong is echter niet veel te zeggen, zoals reeds opgemerkt is. Uit de waarnemingen blijkt (zie figuur III.3.b), dat de helling van de magnetisatiekromme na een fluxsprong ongeveer gelijk aan  $-1$  is, hetgeen betekent dat bij verdere toename van  $H_e$  praktisch geen nieuwe flux binnendringt, terwijl het preparaat als geheel toch een aanmerkelijk magnetisch moment behoudt na de fluxsprong. Voegen wij hier nog aan toe, dat de laagste waarden van  $-4\pi M$  in het fluxspronggebied ongeveer op een gladde kromme liggen, die continu aansluit aan de gedeelten, waar geen fluxsprongen waargenomen worden, dan kan men zich voorstellen, dat wij sterk de indruk krijgen dat de toestand die overblijft na een fluxsprong minder willekeurig is dan men in eerste instantie zou vermoeden. In het volgende hoofdstuk, waar de fluxverdeling binnen de draden besproken wordt, zullen wij hierop nader ingaan. Op dit ogenblik willen wij stellen dat, nadat het systeem tot rust is gekomen, de gradiënten in de fluxdichtheid overal beneden hun maximale waarde liggen, zodat bij verdere toename van  $H_e$  de gemiddelde magnetische inductie nauwelijks zal toenemen.

Een ander criterium voor het optreden van fluxsprongen werd voorgesteld door Kim e.a.): „Het optreden van fluxsprongen wordt begunstigd, als de thermische energie, die vrijkomt door de beweging van de fluxbundels, langzamer wordt afgevoerd dan de electromagnetische energie – door de toename van de temperatuur gaat de beweging van fluxdraden door – wordt omgezet in warmte.” Daar bij lagere temperaturen de warmtegeleiding afneemt, terwijl

de snelheid der fluxdraden wellicht groter zal worden, zou ook dit criterium het door ons waargenomen gedrag kunnen verklaren. Zelfs het feit, dat fluxsprongen optreden in het gebied rondom  $H_{c2}/2$  kan begrepen worden, indien wij aannemen, dat de warmtegeleiding van het Nb – zoals is waargenomen voor In-4 at % Bi<sup>8)</sup> – een minimum heeft in dit gebied.

Door de verhouding van de thermische en electromagnetische diffusiecoëfficiënten te beschouwen, komt Goodman<sup>9)</sup> tot de uitspraak, dat het optreden van fluxsprongen vooral te verwachten is voor supergeleiders met een grote waarde van  $\kappa$ . Hij neemt echter voor de beide diffusiecoëfficiënten de waarden, behorende bij het normale materiaal, zodat deze uitspraak ons weinig verder helpt. Wanneer meer bekend is omtrent de warmtegeleiding en de beweging der fluxdraden zal zo'n beschouwingswijze misschien tot belangrijke resultaten kunnen leiden, hoewel men dan tevens in aanmerking moet nemen, dat bij verhoging van de temperatuur en de toename van de magnetische inductie, energie wordt geabsorbeerd door de supergeleider.

Wij komen dan tot de conclusie dat, hoewel de beschouwingen van Kim geenszins uitgesloten zijn tijdens het optreden van fluxsprongen, het criterium van Gorter ons vollediger voorkomt.

#### REFERENTIES

- 1) S. H. Goedemoed, C. van Kolmeschate, D. de Klerk en C. J. Gorter, *Physica* **30**, 1225 (1964).
- 2) S. H. Goedemoed, C. van Kolmeschate, P. H. Kes en D. de Klerk, *Comm. Kam. Onnes Lab.* 348a; *Physica* **32**, 1183 (1966).
- 3) S. M. Wasim, C. G. Grenier en N. H. Zebouni, *Phys. Letters* **19**, 165 (1965).
- 4) C. J. Gorter, *Leiden Comm. Suppl.* 123c.
- 5) J. Bardeen, L. N. Cooper en J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957).
- 6) J. Ferreira da Silva, N. W. J. van Duykeren en Z. Dokoupil, *Comm. Kam. Onnes Lab.* 348b; *Physica* **32**, 1183 (1966).
- 7) Y. B. Kim, C. F. Hempstead en A. R. Strnad, *Phys. Rev.* **129**, 528 (1963).
- 8) L. Dubeck, P. Lindenfield, E. A. Lynton en H. Rohrer, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 110, (1964).
- 9) B. B. Goodman, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 12 (1964).

## Hoofdstuk V

### DE FLUXVERDELING BINNEN DE SUPERGELEIDENDE DRADEN

#### 1. INLEIDING

Reeds in 1935 werd een model voorgesteld om het onomkeerbare gedrag, zoals men dit in sommige gevallen waarnam bij magnetisatiemetingen, te beschrijven. Mendelssohn<sup>1) 2)</sup> veronderstelde, dat in de supergeleider een fijn, veelvoudig samenhangend, netwerk – bestaande uit materiaal met een hoge waarde van het kritische veld – aanwezig zou zijn, terwijl zich daartussen materiaal met een lagere waarde van het kritische veld of zelfs normaal materiaal zou bevinden. Wordt het magneetveld opgezet, dan worden persisterende stromen opgewekt in het netwerk ten gevolge van de inductiespanning door de penetrerende flux. De aldus gegenereerde stromen zullen het aangelegde veld naar binnen toe verlagen en zodoende een diamagnetisch gedrag van de supergeleider als geheel demonstreren. Wordt  $H_e$  hierna verlaagd, dan kan – vanaf een zekere waarde van  $H_e$  – het voorkomen, dat  $4\pi M > 0$  wordt.

In 1962 nam Bean<sup>3)</sup> dit Mendelssohn-sponsmodel als uitgangspunt voor de beschrijving van de – aan een preparaat van, in poreus Vycorglas, geperst Pb<sup>4)</sup> – waargenomen magnetisatiekromme. Omtrent de persisterende stromen, welke in het netwerk worden gegenereerd, merkt hij op dat deze door iedere inductiespanning – hoe gering ook – zullen worden opgewekt tot een maximale waarde van de stroomdichtheid  $J_c$ . Dit betekent, dat er slechts drie stroomtoestanden optreden:

- 1)  $J=0$  in die gebieden, waar het veld nog „nooit” (gerekend vanaf het ogenblik, dat de supergeleider voor het laatst volledig stroomloos – dat is in de toestand  $H_e=0$ ,  $B(r)=0$  – was) is doorgedrongen en
- 2, 3)  $J = \pm J_c$  is maximaal, loodrecht op de veldrichting, in de gebieden waar het veld is doorgedrongen; het teken is afhankelijk van de richting van de laatste locale veldverandering.

Hoewel Bean voor zijn berekeningen (analoog aan de onze in paragraaf V.3) aanneemt, dat  $J_c$  onafhankelijk is van de waarde van het magneetveld – een aanvaardbare vereenvoudiging, indien men slechts gevallen beschouwt, waarvoor  $H_e \ll H_{c2}$  is – merkt hij op, dat men in bepaalde gevallen tot een betere beschrijving van het magnetische gedrag komt door middel van een geschikte  $J_c(H) \sim$  afhankelijkheid.

Bean's beschouwing werd gevolgd door verschillende andere, wat minder eenvoudige beschouwingen en modellen, ter discussie van de snel toenemende gegevens over de mengtoestand. De microstructuur van de mengtoestand, via welke de optredende Lorentzkrachten aan het kristalrooster moeten worden overgedragen, speelde daarbij een grote rol <sup>5)</sup> 6).

Door het meten van het veld binnen en buiten een dunwandige cylinder van geperst Nb-poeder in een axiaal magneetveld verkreeg Kim <sup>7)</sup> als eerste een experimenteel resultaat voor de afhankelijkheid van  $J_c$  van het magneetveld. De beste beschrijving werd verkregen door:

$$J_c(B + B_0) = \alpha, \quad (\text{V.1.1})$$

waarin  $\alpha$  en  $B_0$  materiaalconstanten zijn. Afgezien van de constante  $B_0$  betekent dit, dat de Lorentzkracht per volume-eenheid constant is in de gebieden, waar het veld is doorgedrongen.

Een mogelijke verklaring van Kim's relatie (V.1.1) werd gegeven door Anderson <sup>6)</sup>; deze veronderstelde dat, ten gevolge van thermische activering, bundels fluxdraden de energiebarrières – door de variaties in de structuur van het rooster ontstaan er voorkeursplaatsen voor de fluxdraden – zouden passeren. Hij nam daarbij aan dat de variaties in de vrije energie ( $\Delta F$ ) ten gevolge van de inhomogeniteiten van het materiaal gelijk waren aan  $p\Delta F_{max}$  met  $\Delta F_{max} = H_c^2/8\pi$  en  $p$  dus een parameter, die de mate van de pinning aangeeft. Deze voorstelling van zaken leidt ertoe dat, wanneer het magneetveld wordt opgezet tot een waarde  $H_e$ , het binnendringen van flux hierna doorgaat tot, theoretisch, de evenwichtssituatie –  $J_c(r) = 0$  – is bereikt. Dit proces wordt aangeduid met het „kruipen van flux”.

Van de manieren, waarop men inzicht trachtte te verkrijgen omtrent het pinnende mechanisme of wel de  $J_c(H) \sim$  relatie, noemen wij de volgende:

- a) A. M. Campbell, J. E. Evetts en D. Dew-Hughes <sup>8)</sup> betrekken de „omkeerbare” magnetisatiekromme in hun berekeningen, en wel om twee redenen; ten eerste veronderstellen zij dat aan het oppervlak van de supergeleider de magnetische inductie in thermodynamisch evenwicht is met het aangelegde magneetveld, zodat zij voor de randconditie de  $(4\pi M(H))_{ev} \sim$  relatie dienen te kennen. Ten tweede maken zij gebruik van de door Friedel e.a. <sup>9)</sup> berekende kracht, die ten gevolge van de gradiënt in de dichtheid der fluxoids per lengte-eenheid van een fluxdraad werkt:



$$F_d(r) = \frac{\Phi_o}{4\pi} \left( \frac{\partial H(r)}{\partial r} \right)_T ; \quad (\text{V.1.2})$$

hierin is  $H(r)$  het magneetveld, dat de magnetische inductie  $B(r)$  zou veroorzaken, wanneer het materiaal een omkeerbaar magnetisch gedrag zou demonstreren.

Voor een drietal Pb-Bi legeringen worden met behulp van het voorgaande en een pinnende kracht, die evenredig is met  $B^{-1}$ , de waargenomen magnetisatiekrommen bediscussieerd.

- b) H. E. Cline, C. S. Tedmon Jr en R. M. Rose<sup>10</sup>) identificeren de  $J_c(H) \sim$  relatie, voor de berekening van het magnetische moment van een gedeformeerde Nb-cylinder in een axiaal magneetveld, met de experimenteel bepaalde kritische transportstroomdichtheid  $J_t(H)$ , wanneer het magneetveld loodrecht op de as van de cylinder staat. Het resultaat toont, dat dan inderdaad de berekende magnetisatiekromme de vorm van de gemeten kromme heeft.
- c) W. A. Fietz, M. R. Beasley, J. Silcox en W. W. Webb<sup>11</sup>) beschrijven het magnetische gedrag van Nb-25% Zr nauwkeurig tussen 4 en 40 kOe met de relatie:

$$J_c(B) = a_o \exp\left(-\frac{B}{b_o}\right) + c_o, \quad (\text{V.1.3})$$

waarin  $a_o$ ,  $b_o$  en  $c_o$  parameters zijn om het gemeten  $J_t(H) \sim$  verband te beschrijven (vgl. b).

- d) H. E. Cline, R. M. Rose en J. Wulff<sup>12</sup>) meten de veldverdeling, in de spleet loodrecht  $H_e$ , tussen twee halve ellipsoïden van gedeformeerd Nb. De empirische relatie, die de veldverdeling beschrijft, luidt:

$$r - r_o = C_o B + C_1 [\exp(C_2 B) - 1]; \quad (\text{V.1.4})$$

waarin  $r_o$  de plaats aangeeft, waar  $B$  gelijk aan nul wordt.

- e) L. N. J. de Jong en B. S. Blaisse<sup>13</sup>) beschouwen het sponsmodel, waarbij de ruimte tussen de filamenten opgevuld gedacht wordt met supergeleidend materiaal van de eerste soort. Het resultaat ervan is, dat:

$$J_c(H) = A (H_f - 2H), \quad (\text{V.1.5})$$

waarin  $A$  een constante is, afhankelijk van het materiaal en de straal der filamenten en  $H_f$  het kritische veld van deze filamenten. Relatie (V.1.5) geeft aan, dat voor  $H > H_f/2$  - indien ten minste  $H_f/2 > H_e$  van het materiaal tussen de filamenten - het preparaat geheel in de normale toestand is.

Op grond van de grote mate van gelijkvormigheid der door ons waargenomen magnetisatiekrommen bij verschillende temperaturen - zelfs bij de

lagere temperaturen, waar fluxsprongen optreden – kregen wij de indruk, dat het wellicht mogelijk was om door middel van één  $J_c(B, T) \sim$  relatie althans een groot deel van deze krommen te beschrijven. Hierbij stelden wij de eis, dat ten gevolge van het gemis aan inzicht omtrent de wisselwerking tussen de fluxdraden en de inhomogeniteiten van het rooster, een minimaal aantal aanpasbare parameters diende te worden gebruikt. Bezien wij dan de genoemde relaties dan valt ons op, dat slechts (V.1.5) voor ons doel geschikt lijkt. De andere relaties leiden niet tot een verdwijnend magnetisch moment bij een eindige waarde van  $H_c (= H_{c2})$  en/of bevatten teveel onduidelijke parameters.

Ten aanzien van (V.1.5) merken wij op, dat wij het weinig aanvaardbaar vinden om het door ons als  $H_{c2}$  gewaarmerkte veld te zien als de halve waarde van het kritische veld der filamenten. Wanneer wij, hetgeen in ons geval noodzakelijk is, de ruimte tussen de filamenten opgevuld denken met supergeleidend materiaal van de tweede soort, zou dit leiden tot vier kritische velden. Het grootste bezwaar achten wij echter, dat dan geen duidelijk beeld wordt gegeven van de wisselwerking der individuele fluxdraden met de inhomogeniteiten van het rooster.

## 2. DE PINNENDE KRACHT

Ten einde een keuze te doen voor de afhankelijkheid van de pinnende kracht ( $F_p$ ) van de gereduceerde temperatuur ( $t$ ) en de plaatselijke, gemiddelde magnetische inductie ( $B(r)$ ) gaan wij uit van de door Anderson<sup>6)</sup> gemaakte veronderstelling, dat de pinning veroorzaakt wordt doordat in een inhomogeen materiaal voorkeursplaatsen voor fluxdraden bestaan. Dat wil zeggen, dat ten gevolge van de variaties in de roostersamenstelling de penetratiediepte ( $\lambda$ ) en de cohaerentielengte ( $\xi$ ) van plaats tot plaats zullen verschillen en daarmee de energie van de fluxdraad. In tegenstelling echter tot Anderson, die veronderstelde dat de variaties van de energie onafhankelijk van  $B$  zijn, verkiezen wij een afname van de pinning te nemen, indien  $B$  toeneemt. Dit komt overeen met de opvatting van Gorter<sup>14)</sup> die, voor een supergeleider met een vermeende lagenstructuur, de pinnende kracht per  $\text{cm}^3$  evenredig met  $H_{c2}^2 |\psi(B)|^2$  veronderstelt; hierin beschrijft  $|\psi(B)|^2 \equiv n_{s,e}(B)/n_{s,e}(0)$  de afname van de dichtheid der supergeleidende electronen ten gevolge van de toename van  $B$  bij constante temperatuur ( $|\psi(0)|^2 = 1$  en  $|\psi(H_{c2})|^2 = 0$ ).

Onze veronderstelling is nu, dat de pinnende kracht, per lengte-eenheid van een fluxdraad, dezelfde afhankelijkheid heeft van  $t$  en  $B$  als  $H_{c2}^2(t) |\psi(B)|^2$ .

Uit de definitierelaties van  $\lambda$  en  $\xi$  (I.5.19 en 22) kan men met behulp van de relaties (I.5.3, 16 en 25) afleiden, dat:

$$H_c^2(t) = \frac{\Phi_0^2}{8\pi^2 \lambda^2(t) \xi^2(t)} \quad (\text{V.2.1})$$

Voor  $|\psi(B)|^2$  nemen wij aan, dat alleen de supergeleidende electronen, die zich ter plaatse van de kernen der fluxdraden bevonden, normaal geworden zijn, dus:

$$|\psi(B)|^2 = 1 - \frac{B}{\Phi_0} 2\pi\xi^2 = \frac{H_{c2} - B}{H_{c2}}, \quad (\text{V.2.2})$$

waarbij gebruik gemaakt is van (I.5.24).

Op grond van de eerder gemaakte veronderstelling betreffende  $F_p(t, B)$ , verkrijgen wij dan:

$$\frac{F_p(t, B)}{F_p(0, 0)} = \frac{H_c^2(t) |\psi(B)|^2}{H_c^2(0)} = |\psi_0(t)|^2 \frac{H_{c2}(t) - B}{H_{c2}(0)}, \quad (\text{V.2.3})$$

waarin  $|\psi_0(t)|^2$  het verloop met de temperatuur van  $\lambda^2(t)$  beschrijft:  $\lambda^2(t) = \lambda^2(0) / |\psi_0(t)|^2$  (vergelijk (I.5.22)) en  $F_p(0, 0)$  het beste gezien kan worden als de pinnende kracht, die de als eerste bij  $t=0$  en  $H_e = H_{c1}(0)$  binnendringende fluxdraad ondervindt.

Wanneer wij nu  $H_e$  laten toenemen tot een waarde  $H_{c1} < H_e < H_{c2}$ , uitgaande van de fluxvrije toestand bij  $H_e = 0$ , dan zal de dichtheid der fluxdraden vanaf het oppervlak naar binnen toe afnemen, zodanig dat voortdurend de pinnende kracht evenwicht maakt met de drijvende kracht van relatie (V.1.2). Daar er aanwijzingen zijn, dat het oppervlak van onze Nb(II)-draden zeer onregelmatig is (paragraaf III.3), zodat de spiegelkracht verwaarloosd kan worden, veronderstellen wij dat aan het oppervlak  $B(R)$  in thermodynamisch evenwicht is met  $H_e$  (vergelijk paragraaf V.1.a). Verder merken wij op, dat ten gevolge van de gradiënt in de dichtheid der fluxdraden er gemiddelde stromen lopen, die het aangelegde magneetveld voor kleinere  $r$  effectief verlagen. Terwijl dus  $B(r)$  vanaf de waarde  $B(R)$  aan het oppervlak afneemt voor kleinere  $r$  tot de waarde nul bij  $r=r_0$  - afhankelijk van  $H_e$  en  $R$  - neemt het magneetveld af van  $H_e$  aan het oppervlak tot  $H_{c1}$  bij  $r_0$ . Het deel van de draad, waarvoor  $r < r_0$  is, is nog volledig in de supergeleidende toestand. Indien  $H_e \geq H_e^*$  wordt - wij gebruiken de aanduiding  $H_e^*$  voor de waarde van het aangelegde magneetveld, waarvoor  $r_0 = 0$  - is de gehele draad in de mengtoestand gekomen.

Het ligt nu voor de hand om de toevoeging te maken, dat het verband tussen het locale magneetveld  $H(r)$  en de locale magnetische inductie  $B(r)$  éénduidig is (locale reversibiliteit; zie paragraaf IV.2), slechts afhankelijk van de temperatuur  $t$ . Wij komen zo tot de omkeerbare magnetisatiekromme:

$$4\pi M(r) = B(r) - H(r). \quad (\text{V.2.4})$$

De drijvende kracht (V.1.2) kan dan geschreven worden als:

$$F_d(r) = \frac{\Phi_0}{4\pi} \cdot \frac{1}{1 + \mu(r)} \cdot \frac{\partial B(r)}{\partial r}, \quad (\text{V.2.5})$$

waarin  $\mu(r) \equiv (\partial 4\pi M(r) / \partial H(r))_t$ .

Indien nu de pinnende kracht van (V.2.3) evenwicht maakt met de drijvende kracht van (V.2.5), komen wij tot de volgende relatie voor de gradiënt van  $B(r)$ :

$$\left(\frac{\partial B(r)}{\partial r}\right)_{H_e, t} = \beta \frac{1 + \mu(r)}{1 + \mu_{e2}} (H_{e2} - B(r)), \quad (\text{V.2.6})$$

waarin de parameter  $\beta(t)$ , met de dimensie  $[l^{-1}]$ , wordt gegeven door:

$$\beta(t) \equiv \frac{4\pi (1 + \mu_{e2}(t)) F_p(0, 0)}{\Phi_0 H_{e2}(0)} |\psi(t)|^2 \quad (\text{V.2.7})$$

en  $\mu_{e2}$  gelijk is aan  $\mu(r)$  voor  $H(r) \approx H_{e2}$ .

### 3. DE BEPALING VAN $\mu_{e2}$ EN $\beta$

Wanneer, uitgaande van de toestand  $H_e = 0$ ,  $B(r) = 0$  de waarde van  $H_e$  toeneemt, dan kan het verloop van het gemeten magnetische moment  $(4\pi M)$  met  $H_e$  worden berekend, indien de omkeerbare,  $B(H) \sim$  relatie en de parameter  $\beta(t)$  bekend zijn, volgens:

$$\overline{4\pi M} = \frac{1}{\pi R^2} \int_{r_0}^R B(r) 2\pi r dr - H_e, \quad (\text{V.3.1})$$

waarin  $r_0 \geq 0$  dient te zijn.

De veronderstelling, dat de „omkeerbare” magnetisatiekromme – net als voor de homogene supergeleiders van de tweede soort – voor  $H_e \approx H_{e2}$  lineair met  $H_e$  verloopt met een helling  $\mu_{e2}$ , stelt ons in staat zowel  $\mu_{e2}$  als  $\beta$  te bepalen. Voor deze waarden van  $H_e$  is de mengtoestand tot de as van de draden doorgedrongen en bovendien kan in (V.2.6),  $\mu(r) = \mu_{e2}$ , genomen worden, zodat

$$\frac{\partial B(r)}{\partial r} = \beta (H_{e2} - B(r)). \quad (\text{V.3.2})$$

Oplossen  $B(r)$  uit (V.3.2) met de randconditie:

$$B(R) = H_e - \mu_{e2} (H_{e2} - H_e) \quad (\text{V.3.3})$$

levert dan:

$$B(r) = H_{e2} - (1 + \mu_{e2}) (H_{e2} - H_e) e^{\beta(R-r)} \quad (\text{V.3.4})$$

en met relatie (V.3.1) wordt dan voor  $\overline{4\pi M}$  verkregen:

$$\overline{4\pi M} = (H_{e2} - H_e) [1 - (1 + \mu_{e2}) \Omega(\beta r)_0^R], \quad (\text{V.3.5})$$

waarin:

$$\Omega(\beta r)_0^R \equiv \frac{1}{\pi R^2} \int_0^R e^{\beta(R-r)} \cdot 2\pi r dr = 2 \frac{e^{\beta R} - 1 - \beta R}{\beta^2 R^2}. \quad (\text{V.3.6})$$

Ook voor het geval, waarbij  $H_e$  wordt verlaagd vanaf een waarde  $H_e > H_{c2}$ , kunnen wij hetzelfde betoog houden. De enige wijziging, die dan aangebracht moet worden, is dat  $\beta$  door  $-\beta$  moet worden vervangen, zoals blijkt uit relatie (V.2.6).

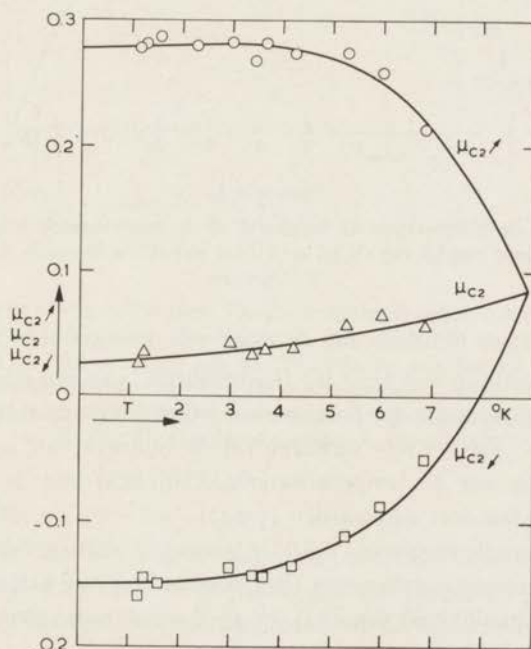
Wanneer wij de hellingen van de waargenomen magnetisatiekrommen in het eerste kwadrant aanduiden door  $\mu_{c2} \uparrow$  en in het tweede kwadrant door  $\mu_{c2} \downarrow$ , dan krijgen wij hiervoor uit (V.3.5):

$$\mu_{c2} \uparrow = (1 + \mu_{c2}) \Omega(\beta r)_o^R - 1 \quad (\text{V.3.7})$$

en:

$$\mu_{c2} \downarrow = (1 + \mu_{c2}) \Omega(-\beta r)_o^R - 1 \quad (\text{V.3.8})$$

Met behulp van deze relaties kunnen nu  $\beta$  en  $\mu_{c2}$  uit de experimentele waarden van  $\mu_{c2} \uparrow$  en  $\mu_{c2} \downarrow$  worden berekend.



Figuur V.1

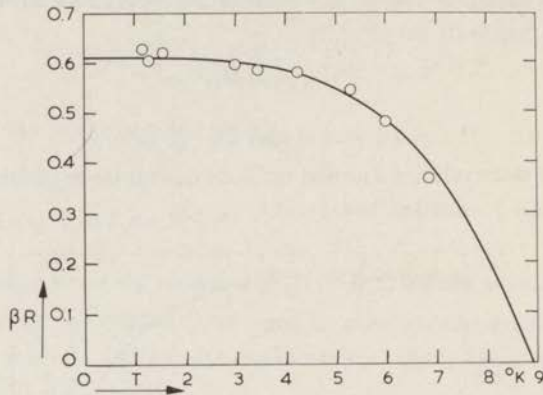
$\mu_{c2} \uparrow$ ,  $\mu_{c2} \downarrow$  en  $\mu_{c2}$  als functie van de temperatuur.  $\circ$ , experimentele punten van  $\mu_{c2} \uparrow$ ,  $\square$ , experimentele punten van  $\mu_{c2} \downarrow$ .  $\Delta$ ,  $\mu_{c2}$ , berekend uit de experimentele waarden van  $\mu_{c2} \uparrow$  en  $\mu_{c2} \downarrow$  door middel van (V.3.7 en 8). De getrokken  $\mu_{c2} \sim$  kromme is bepaald volgens (V.4.4); voor  $\epsilon$  zijn de waarden van fig. (V.4) genomen, voor  $H_{c2}$  die van de gladde kromme in fig. (III.6) en voor  $H_c$  de waarden, die voldoen aan de  $\Delta E_n \sim$  kromme van fig. (IV.2). De getrokken  $\mu_{c2} \uparrow$  en  $\mu_{c2} \downarrow \sim$  krommen zijn bepaald volgens (V.3.7 en 8), waarbij gebruik gemaakt is van de getrokken  $\mu_{c2} \sim$  kromme en de  $\beta R \sim$  kromme van fig. (V.2).

Figuur (V.1) toont het verloop met de temperatuur van  $\mu_{c2} \uparrow$  en  $\mu_{c2} \downarrow$  met de eruit berekende waarden van  $\mu_{c2}$ ; terwijl in figuur (V.2)  $\beta R$  als functie van de temperatuur gegeven wordt.

Het blijkt dat de waarden van  $\beta R$  voor het Nb(II)-preparaat, voldoen aan de relatie

$$\beta R = 0,61 (1 - t^4), \quad (\text{V.3.9})$$

voorgesteld door de getrokken lijn in figuur (V.2).

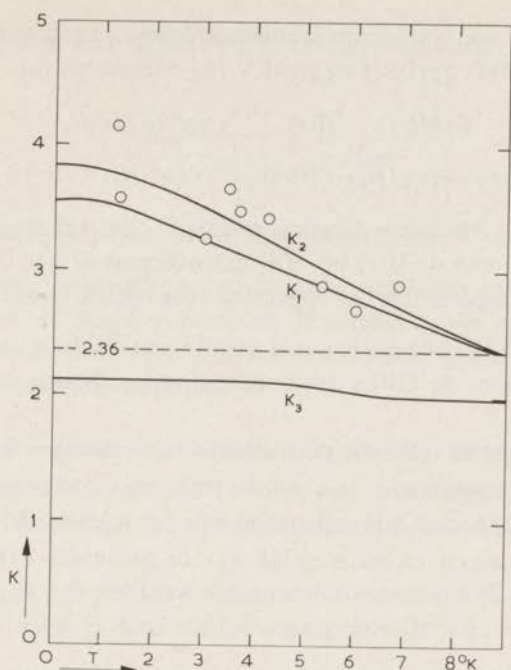


Figuur V.2

$\beta R$  als functie van de temperatuur. O, berekend uit de experimentele waarden van  $\mu_{e2}\uparrow$  en  $\mu_{e2}\downarrow$  (zie fig. V.1) door middel van (V.3.7 en 8). De getrokken kromme voldoet aan (V.3.9).

Nog afgezien van het feit, dat de door ons voorgestelde  $F_p$  het waargenomen lineaire verloop van  $4\pi M$  bij  $H_{e2}$  beschrijft, valt ons de afhankelijkheid van  $\beta$  van de temperatuur op. Beschouwen wij namelijk de relatie (V.2.7), dan zien wij dat  $\beta \sim |\psi_0(t)|^2$  is – wanneer wij de bijdrage van  $\mu_{e2}$  verwaarlozen ( $\mu_{e2} \ll 1$ ) – en als wij de temperatuurafhankelijkheid van de ordeparameter uit het twee-fluidamodel aanvaarden ( $|\psi_0(t)|^2 \approx 1 - t^4$ ; zie relatie (I.5.28)), is dus het experimentele resultaat (V.3.9) in overeenstemming met onze aanname omtrent het pinnende mechanisme. Wij voegen hier nog aan toe, dat ook de temperatuurafhankelijkheid van  $\lambda^2(t)$  vrij goed wordt beschreven door het twee-fluidamodel (vgl. (V.2.1)).

Uit figuur (V.1) blijkt, dat de spreiding der resultaten voor  $\mu_{e2}$  vrij groot is, hetgeen te begrijpen is, wanneer men opmerkt, dat  $(1 + \mu_{e2})$  wordt berekend uit  $\mu_{e2}\uparrow$  en  $\mu_{e2}\downarrow$ , waarbij  $\mu_{e2} \ll 1$  is. Wanneer wij dan ook  $\kappa$  – genoteerd als  $\kappa_2(t)$ <sup>15</sup> – berekenen met behulp van (I.7.3), dan zien wij ook hiervoor een grote spreiding der meetpunten. Dit wordt geïllustreerd in figuur (V.3) waar  $\kappa_2(t)$  te zamen met  $\kappa_1(t)$  – berekend uit  $H_{e2}(t)$  en  $H_c(t)$  met (I.5.26) – en  $\kappa_3(t)$  (bepaald uit  $H_{c1}(t)$  en  $H_{c2}(t)$  met figuur (I.8)) wordt getoond. Wij zien dat, in de Ginzburg-Landaulimiet ( $t \rightarrow 1$ ) waar  $\kappa_1(1) = \kappa_2(1) = \kappa_3(1) \equiv \kappa$  zou moeten gelden,  $\kappa_2$  de tendens heeft naar dezelfde waarde te gaan als  $\kappa_1$  ( $\kappa_1(1) = 2,36$ ), doch dat dit niet het geval schijnt te zijn voor  $\kappa_3$ . Dit wijst erop, dat de door ons



Figuur V.3.

$\kappa_1$ ,  $\kappa_2$  en  $\kappa_3$  als functie van de temperatuur. De  $\kappa_1$ -kromme is bepaald met behulp van (I.5.26); daarbij is gebruik gemaakt van de  $H_{c2}$ -kromme van fig. (III.6) en de waarden van  $H_c$ , welke voldoen aan de  $\Delta E_n$ -kromme van fig. (IV.2).  $\circ$ , de waarden van  $\kappa_2$ , berekend met (I.7.3) uit de meetpunten van  $\mu_{c2}$  (fig. V.1). De  $\kappa_2$ -kromme is bepaald uit de  $\mu_{c2}$ -kromme van fig. (V.1) met behulp van (I.7.3). De  $\kappa_3$ -kromme is bepaald uit de verhouding van  $H_{c2}$  en  $H_{c1}$  (fig. III.6) volgens Harden en Arp (fig. I.8).

bepaalde waarden van  $H_{c1}$  aan de hoge kant zijn. Dit is ook reeds gebleken bij de vergelijking van onze resultaten met die van De Sorbo (zie figuur III.7) en kan worden toegeschreven aan de grote waarde van  $\partial B(R)/\partial r$  ten gevolge van de grote  $\mu(r)$  en de geringe  $B(R)$  (zie V.2.6) en eventueel aan een toch nog enigszins effectieve spiegelkracht (paragraaf III.3).

#### 4. DE MAGNETISATIEKROMME IN HET EERSTE EN TWEDE KWADRANT

Om het verloop van  $4\pi M$  in het tussengebied ( $H_{c1} \leq H_e \ll H_{c2}$ ) te kunnen berekenen, dienen wij het verloop van  $4\pi M(r)$  te kennen. Dan kunnen wij namelijk langs grafische weg, uitgaande van (V.2.6), het verloop van  $B(r)$  bepalen, daarbij gebruik makend van de reeds verkregen waarden van  $\beta$  en  $\mu_{c2}$ . Hiervoor willen wij drie mogelijkheden in overweging nemen:

- a) wij kunnen de omkeerbare magnetisatiekromme – zoals voorgesteld is door Campbell e.a.<sup>8)</sup> (vergelijk paragraaf V.1) – idealiseren tot:

$$4\pi M(r) = -H(r) \quad \text{voor } H(r) < H_{c1} \quad (\text{V.4.1})$$

$$4\pi M(r) = -\mu_{c2} (H_{c2} - H(r)) \quad \text{voor } H_{c1} < H(r) \leq H_{c2}; \quad (\text{V.4.2})$$

- b) wij kunnen een Abrikosov-kromme schetsen – dat wil zeggen een logaritmisch verloop van  $4\pi M(r)$  bij  $H_{c1}$ , dat overgaat in het lineaire bij  $H_{c2}$  – ervoor zorg dragend, dat het oppervlak ervan gelijk is aan  $H_e^2/2$ ;
- c) wij kunnen  $4\pi M(r)$  berekenen met behulp van de door ons geamendeerde uitdrukking voor de Gibbs vrije energie van v. Beelen en Gorter (I.6.7).

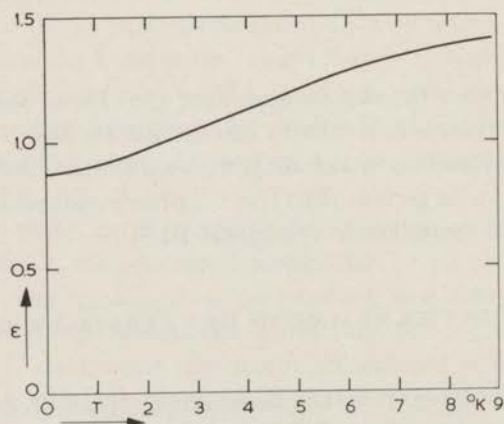
Wij kozen in eerste instantie de methode (a) vanwege de mathematische eenvoud, doch de resultaten voor  $4\pi M$  in het lage middengebied waren van dien aard, dat wij besloten berekeningen aan het lagenmodel uit te voeren.

Hierbij gingen wij na, of het mogelijk was, de parameter  $\varepsilon$  (zie paragraaf I.6) zo te kiezen, dat de experimenteel bepaalde waarden van  $H_{c1}$ ,  $H_c$ ,  $H_{c2}$  en  $\mu_{c2}$  consistent zouden zijn. Hiertoe gingen wij als volgt te werk:

- 1) uit de waarden van  $H_{c1}$ ,  $H_c$  en  $H_{c2}$  werd met behulp van de relatie:

$$\frac{H_{c1}^2 H_{c2}}{H_c^3} = \frac{4}{3} (2 - \varepsilon)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{V.4.3})$$

ontstaan door combinatie van de relaties (I.6.10 en 11) – de waarde van  $\varepsilon$  bepaald (zie figuur V.4);



Figuur V.4

$\varepsilon$  als functie van de temperatuur, berekend met behulp van (V.4.3). Voor  $H_{c1}$  en  $H_{c2}$  zijn de krommen van fig. (III.6) genomen, terwijl de waarden van  $H_c$  voldoen aan de  $\Delta E_n \sim$  kromme van fig. (IV.2).



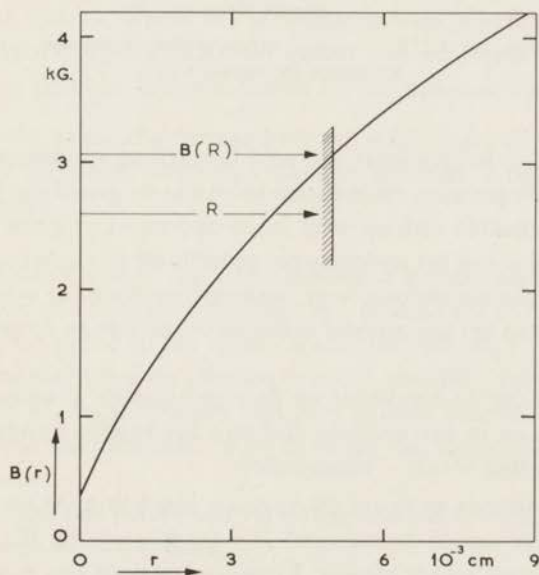
- 2) de aldus bepaalde waarde van  $\varepsilon$  werd vervolgens gebruikt om  $\mu_{e2}$  te berekenen uit:

$$\mu_{e2} = \frac{5}{6 \left[ \frac{5}{8} (3 - \varepsilon) \frac{H_{e2}^2}{H_e^2} - 1 \right]} \quad (\text{V.4.4})$$

ontstaan uit (I.6.12) door substitutie van (I.6.10);

- 3) de zo berekende waarden van  $\mu_{e2}$  werden vergeleken met die, welke uit de experimenten verkregen werden; zie de getrokken lijn in figuur (V.1). Het blijkt, dat de zo berekende  $\mu_{e2}(t) \sim$  curve in redelijke overeenstemming is met de experimentele waarden.

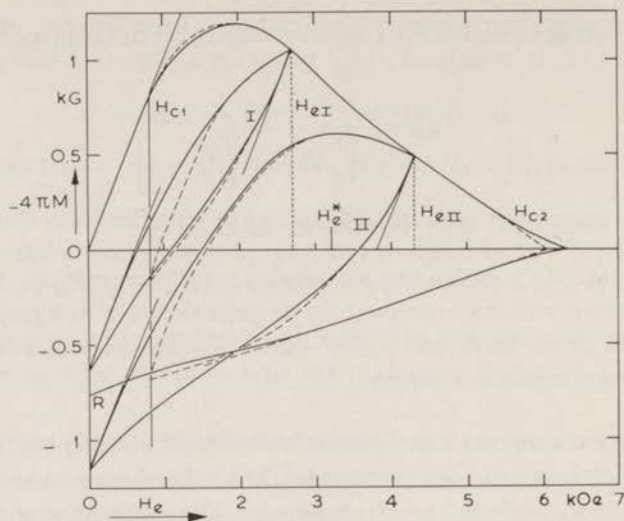
Het verkregen resultaat was dermate bevredigend, dat wij besloten  $4\pi M(r)$  volgens de richtlijnen van het lagenmodel (I.6) te berekenen en vervolgens, op grafische wijze, het verloop van  $B(r)$  te bepalen. Het resultaat voor  $B(r)$  in geval



Figuur V.5

Het verloop van de magnetische inductie  $B(r)$  bij  $4,2^\circ\text{K}$ , bepaald door (grafische) integratie van (V.2.6). Aangegeven is, hoe  $B(r)$  genomen moet worden voor  $H_e = H_e^* = 3200$  Oe, in het geval dat  $H_e$  is opgezet vanuit de zuiver supergeleidende toestand.

van  $T = 4,2^\circ\text{K}$  is weergegeven in figuur (V.5), terwijl tevens voor  $H_e = H_e^* = 3200$  Oe is aangegeven, hoe  $B(r)$  in de draden verloopt. Wanneer wij  $B(r)$  vermenigvuldigen met  $2\pi r$  en integreren over  $r$ , verkrijgen wij  $\bar{B}$  en derhalve  $4\pi M$  ( $= \bar{B} - H_e$ ).



Figuur V.6

Magnetisatiekrommen bij 4,2°K. —, experimentele krommen. - - - - -, berekende krommen (paragraaf V.3).

In figuur (V.6) is het resultaat van zo'n berekening – eveneens voor 4,2°K – vergeleken met de gemeten magnetisatiekromme; de getrokken lijnen geven het experimenteel bepaalde verloop weer en de onderbroken lijnen het berekende. Een uitzondering vormt het onderbroken gedeelte bij  $H_{e1}$  in het eerste kwadrant; dit geeft het berekende verloop weer, wanneer methode (b) wordt gevolgd. Bij gebruikmaking van het lagenmodel vallen de berekende en de gemeten kromme geheel samen.

Wij zien dus, dat de berekende en de experimentele kromme in het gehele eerste kwadrant en in het grootste deel van het tweede kwadrant – wanneer methode (c) gevolgd wordt – samenvallen.

De andere krommen in figuur (V.6) geven aan hoe  $4\pi M$  verloopt, wanneer  $H_e$  wordt opgezet vanuit de toestand  $H_e=0$ ,  $B(r)=0$  tot  $H_{eI}$ , respectievelijk  $H_{eII}$  en daarna weer wordt afgezet. Vanwege het door ons niet te beschrijven gebied beneden  $H_{c1}$ , wanneer althans flux ingevroren is, zijn de berekende krommen slechts betrokken op het gebied  $H_e \geq H_{e1}$ .

Ten einde tot een conclusie te komen omtrent wat wel en wat niet door ons pinnende mechanisme kan worden beschreven, merken wij het volgende op:

- α) wanneer  $H_e$  wordt afgezet vanaf  $H_{eII}$ , dan is  $-d4\pi M/dH_e$  bij  $H_{c1}$  groter dan wanneer  $H_e$  wordt afgezet vanaf  $H_{c2}$ ;
- β) het teruggaande „pad” van  $H_{eII}$  snijdt de magnetisatiekromme van het tweede kwadrant;

$\gamma$ ) wordt  $H_e$  na het doorlopen van het tweede kwadrant – zonder uitstoken (zie punt R in figuur V.6) – opgezet tot  $H_{eII}$  en daarna weer afgezet, dan wordt de door ons berekende kromme gevolgd en wordt weer het punt R bereikt.

Er zijn zo nog tal van andere paden te beschrijven, die alle in een zekere richting voor de oplossing van de waargenomen afwijkingen wijzen, zonder nochtans tot een beschrijvingsmogelijkheid te leiden. Wij noemen hier nog de volgende gevallen:

- $\delta$ ) in een veld  $H_e \gg H_{c1}$  wordt het preparaat van boven  $T_c$  afgekoeld tot  $4,2^\circ\text{K}$  en vervolgens wordt  $H_e$  afgezet; het resultaat is dat de doorlopen kromme nadert tot die van het tweede kwadrant en er vervolgens mee samenvalt;
- $\epsilon$ ) het preparaat wordt afgekoeld in een veld  $H_{e,u} < H_{eII}$ , daarna wordt  $H_e$  verhoogd tot  $H_{eII}$  ( $H_{e,u}$  is zo gekozen, dat wanneer na het afkoelen  $H_e$  toeneemt tot  $H_{eII}$ , de magnetisatiekromme van het eerste kwadrant voor  $H_{eII}$  weer bereikt wordt). Wordt het veld daarna weer afgezet, dan valt de zo doorlopen kromme weer praktisch samen met de berekende. Ook vallen berekende en gemeten kromme samen bij het opzetten van  $H_{e,u}$  tot  $H_{eII}$ ;
- $\zeta$ ) wordt het veld vanaf  $H_{c2}$  verlaagd tot een waarde groter dan  $H_{c1}$  en vervolgens weer verhoogd, dan vallen eveneens gemeten en berekende kromme praktisch samen.

Uit de bovenstaande lijst van onderzoeken komen wij tot de volgende slotsom: de door ons voorgestelde  $\partial B(r)/\partial r \sim$  relatie (V.2.6) beschrijft het gehele verloop in het eerste en het tweede kwadrant voor  $H_e > H_{c1}$  met inbegrip van de paden, uitgezonderd de gevallen ( $\alpha$  en  $\beta$ ), waarbij – volgens het model – voor afnemende  $H_e$  veranderingen van  $B(r)$  zouden moeten optreden in het gebied voor kleine waarden van  $r/R$  en de draad niet tussentijds in de normale toestand is geweest.

Het is ons helaas niet gelukt een verklaring te vinden voor een speciaal gedrag aan de assen van de draden.

## 5. DE WARMTE-ONTWIKKELING IN DE DRADEN

Ten gevolge van de goede overeenkomst tussen het gemeten en het berekende verloop van  $\overline{4\pi M}$  zijn wij geneigd te veronderstellen, dat zowel  $B(r)$  als  $H(r)$  als functies van  $H_e$  (en de waarden die  $H_e$  achtereenvolgens doorloopt, uitgaande van een bekende toestand, bijvoorbeeld  $H_e=0$ ,  $B(r)=0$ ) inderdaad beschreven worden door de relatie (V.2.6). Wanneer wij ons dit realiseren, lijkt het interessant om na te gaan of ook de grootte  $d\overline{Q}/dH_e$  in overeenstemming is met het pinnende mechanisme.

Passen wij de eerste hoofdwet der thermodynamica toe, dan krijgen wij na differentiatie naar  $H_e$ :

$$\left(\frac{\partial Q(r)}{\partial H_e}\right)_T = \left(\frac{\partial E(r)}{\partial H_e}\right)_T + M'(r), \quad (\text{V.5.1})$$

waarin  $(\partial Q(r)/\partial H_e)_T$  de hoeveelheid opgenomen warmte ter plaatse  $r$  in een draad is ten gevolge van de variatie van  $H_e$ , terwijl  $(\partial E(r)/\partial H_e)_T$  aangeeft, hoe in dit geval de magnetische enthalpie verandert;  $M'(r)$  is het werkelijke, locale, magnetische moment:

$$M'(r) = \frac{1}{4\pi} (B(r) - H_e). \quad (\text{V.5.2})$$

De uitdrukking voor  $E(r)$  wordt verkregen door in eerste instantie aan te nemen, dat het veld ter plaatse  $r$  is opgezet vanaf 0 tot  $H(r)$  - waarbij voortdurend thermodynamisch evenwicht tussen  $B(r)$  en  $H(r)$  bestaat - en vervolgens in de zo verkregen uitdrukking voor de magnetische enthalpie het magnetische aandeel te vervangen door het werkelijke:

$$E(r) = \left[ 1 - T \left(\frac{\partial}{\partial T}\right)_{H(r)} \right] G(r) - \frac{1}{8\pi} (H(r) - B(r))^2 + \frac{1}{8\pi} (H_e - B(r))^2. \quad (\text{V.5.3})$$

Ten einde bij de berekeningen geen grafische methoden te hoeven toepassen, beschouwden wij de geïdealiseerde, omkeerbare, magnetisatiekromme (V.4.1 en 2). In de mengtoestand krijgen wij dan voor de Gibbs vrije energie:

$$G(r) = G_n - \frac{\mu c^2}{8\pi} (H_{c2} - H(r))^2, \quad (\text{V.5.4})$$

waarin  $H(r)$  - wij berekenen  $\partial \bar{Q} / \partial H_e$  in het eerste kwadrant - geschreven kan worden als:

$$H(r) = H_{c2} - (H_{c2} - H_e) e^{\beta(R-r)}, \quad (\text{V.5.5})$$

zoals volgt uit (V.2.4) en (V.3.4).

Zoals reeds is opgemerkt in paragraaf (V.2), dringt het veld slechts ten dele binnen voor lage waarden van  $H_e$  (1ste kwadrant); pas voor  $H_e \geq H_e^*$  zijn de draden geheel in de mengtoestand. Substitueren wij  $H(r) = H(0) = H_{c1}$  in (V.5.5), dan vinden wij voor  $H_e^*$ :

$$H_e^* = H_{c2} - (H_{c2} - H_{c1}) e^{-\beta R}. \quad (\text{V.5.6})$$

Wanneer  $H_e < H_e^*$  is, dringt het fluxfront slechts door tot  $r_o$ ; de waarde van  $r_o$  wordt eveneens gevonden met (V.5.5), namelijk door te stellen, dat  $H(r_o) = H_{c1}$ :

$$r_o = R - \frac{1}{\beta} \ln \left[ \frac{H_{c2} - H_{c1}}{H_{c2} - H_e} \right]. \quad (\text{V.5.7})$$

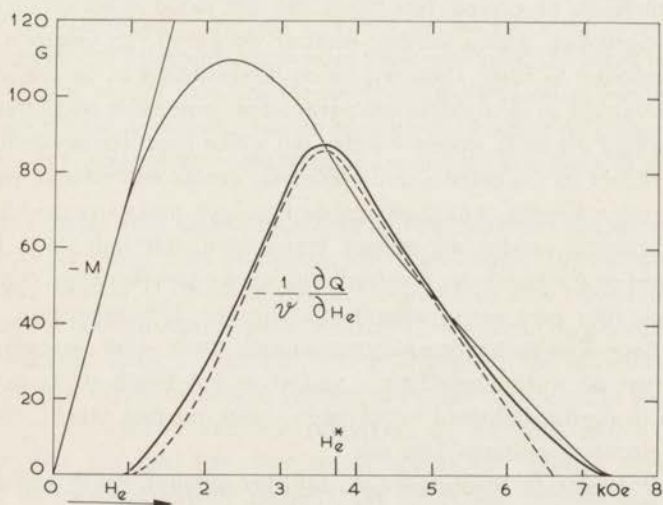
Daar er geen warmte wordt ontwikkeld in het gebied, waarvoor  $r < r_0$ , krijgen wij voor de gemiddelde hoeveelheid geabsorbeerde of vrijgekomen warmte per volume-eenheid en per eenheid van veldverandering:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial \bar{Q}}{\partial H_e}\right)_T &= \frac{1}{\pi R^2} \int_{r_0}^R \left[ \left(\frac{\partial E(r)}{\partial H_e}\right)_T + M'(r) \right] 2\pi r dr = \\ &= \frac{1}{4\pi} \left[ (1 + \mu_{c2}) (H_{c2} - H_e) - \mu_{c2} T \frac{dH_{c2}}{dT} \right] \Omega(\beta r)_{r_0}^R + \\ &- \frac{1}{4\pi} \left( 1 + \mu_{c2} + T \frac{d\mu_{c2}}{dT} \right) (H_{c2} - H_e) \Omega(2\beta r)_{r_0}^R, \end{aligned} \quad (\text{V.5.8})$$

waarin

$$\Omega(\alpha r)_{r_0}^R \equiv \frac{1}{\pi R^2} \int_{r_0}^R e^{\alpha(R-r)} 2\pi r dr; \quad r_0 \leq 0. \quad (\text{V.5.9})$$

In figuur (V.7) is het resultaat van zo'n berekening vergeleken met de gemeten warmtekromme bij 3,3°K; hierbij zijn de waarden van  $\beta R$  en  $\mu_{c2}$  gebruikt, die zijn aangegeven in de figuren (V.1 en 2).



Figuur V.7

Het magnetische moment en de grootheid  $(1/v) (dQ/dH_e)$  in het eerste kwadrant van de hystereselus bij 3,3°K. —, magnetisatiekromme. —, gemeten warmtekromme. - - - -, berekende warmtekromme (V.5.8).

Uit de relatie (V.5.8) volgt, dat de helling van de warmtekromme in het eerste kwadrant voor  $H_e > H_e^*$  constant moet zijn. In dit gebied is  $r_0 = 0$  en daar

$\Omega(\beta r)_o^R$  constant is (zie V.3.6) is  $(\partial/\partial H_e)_T (\partial \bar{Q}/\partial H_e)$  niet langer veldafhankelijk. Om dezelfde reden dient dit ook het geval te zijn in een groot deel van het tweede kwadrant.

Zoals uit figuur (V.7) blijkt, is de overeenstemming tussen de gemeten en de berekende kromme redelijk met inbegrip van het lineaire gedeelte boven  $H_e^*$ . Het maximum van de berekende warmtekromme ligt bij ongeveer  $H_e^*$  en valt praktisch samen met dat van de experimentele kromme. In de omgeving van  $H_{e1}$  is de voorspelde kromme iets lager dan de experimentele, hetgeen kan worden toegeschreven aan de vereenvoudigde  $4\pi M(r) \sim$  relatie (V.2.4).

Het lijkt gerechtvaardigd om op te merken, dat de door ons voorgestelde afhankelijkheid van  $t$  en  $B$  voor de pinnende kracht redelijk in overeenstemming is met het waargenomen gedrag, zowel wat de magnetisatiekromme als wat de warmtekromme betreft.

## 6. DE FLUXSPRONGEN

In paragraaf (IV.3) hebben wij het optreden van fluxsprongen, zoals wij dit waarnemen aan het Nb(II)-preparaat, besproken aan de hand van het criterium van Gorter en het mechanisme, door Kim verantwoordelijk gesteld voor deze vanzelf verlopende processen. Het bleek, dat met name in het eerste kwadrant de fluxsprongen daar gezien werden, waar zij op grond van Gorter's criterium verwacht moesten worden. Daar wij nu de fluxverdeling in de draden kennen – op grond van de, in de voorgaande paragrafen, genoemde resultaten lijkt het gerechtvaardigd dit zo te stellen – weten wij welke krachten op de fluxdraden werken, wanneer zij los raken van de pinnende centra en derhalve welke snelheden zij zullen krijgen. Laatstgenoemde krachten maken evenwicht met de pinnende krachten, zodat wij mogen verwachten, dat inderdaad bij lagere temperaturen de snelheden der fluxdraden groter worden (vergelijk relatie V.2.3), maar dat zij voor  $t \ll 1$  weinig afhankelijk zijn van de temperatuur. Hierdoor krijgt het door Kim gesuggereerde mechanisme meer reliëf, hoewel de onbekendheid met de warmtegeleiding – vooral in het beschouwde geval, waar gradiënten in de fluxdichtheid voorkomen – ook nu nog maakt, dat een beschrijving slechts kwalitatief kan zijn.

Uit de voorgaande beschouwingen lijkt het moeilijk om te besluiten, welk mechanisme precies de oorzaak is van de fluxsprongen. Het onderstaande overzicht van de verkregen informatie zal echter één gegeven (zie punt 5) bevatten, waaruit wij zouden willen opmaken, dat het criterium van Gorter de voorkeur verdient.

- 1) De magnetisatiekrommen, die met behulp van het, door ons voorgestelde, pinnende mechanisme (zie paragraaf V.2.3 en 4) worden berekend, vallen samen met de experimentele krommen in die gebieden, waar geen flux-

sprongen optreden; in het fluxspronggebied zijn de waarden van de waargenomen magnetische momenten steeds lager dan de berekende.

- 2) Bij ongeveer  $3,5^\circ\text{K}$ , waar gewoonlijk slechts één sprong gezien wordt (soms twee of geen), treedt deze op bij ongeveer  $H_e^*$  (V.5.6); na de fluxsprong „stijgt” de magnetisatiekromme met een helling, welke ongeveer gelijk is aan die beneden  $H_{e1}$  en valt al spoedig weer samen met de berekende kromme.
- 3) Naarmate de temperatuur  $T_o$ , waarbij de magnetisatiekromme wordt doorlopen, lager is, wordt het fluxspronggebied groter (gesitueerd rondom  $H_e^*$ ) en volgen de sprongen elkaar steeds vlugger op, waardoor de volgens (V.4) berekende kromme tussen twee sprongen in niet meer wordt bereikt; aan het einde van het fluxspronggebied gebeurt dit echter nog wel.
- 4) De laagste waarden van  $-\overline{4\pi M}$  na de fluxsprongen lijken op een ongeveer gladde kromme te liggen, die continu aansluit aan de gedeelten van de magnetisatiekromme, waar geen fluxsprongen optreden.
- 5) Als het preparaat door middel van het He-gas warmtecontact heeft met het He-bad, zijn de sprongen groter dan wanneer het zich in het vloeibare He bevindt. In het laatste geval zijn de sprongen kleiner naarmate  $dH_e/dt$  kleiner is, althans voor  $H_e \lesssim H_e^*$ . Zelfs is het mogelijk dit gebied te doorlopen zonder dat fluxsprongen worden waargenomen. Dit bleek te gebeuren bij  $T_o = 1,2^\circ\text{K}$  en  $dH_e/dt \approx 150 \text{ Oe sec}^{-1}$ ; het merkwaardige hierbij was, dat de kromme door de minima van de bij slechtere koeling en grotere waarden van  $dH_e/dt$  waargenomen magnetische momenten (zie punt 4) ging.

Het is met name deze laatste waarneming, die naar ons gevoel niet te verklaren is met het door Kim gesuggereerde mechanisme. Ten aanzien van het criterium van Gorter is de situatie anders; men kan zich voorstellen dat de gladde kromme het verloop aangeeft, waarbij voortdurend de gemiddelde magnetische enthalpie gelijk is aan die van de draden in de normale toestand. Helaas is dit niet experimenteel te verifiëren, omdat bij deze lage waarden van  $dH_e/dt$  en goede koeling van het preparaat de warmtekromme met onze apparatuur niet gemeten kan worden. In geval van grotere waarden van  $dH_e/dt$  zal de toename van de temperatuur tot gevolg hebben, dat  $\Delta E_n$  toeneemt (vergelijk figuur IV.2) en derhalve grotere waarden van  $\partial B(r)/\partial r$  (leidende tot grotere waarden van  $-\overline{4\pi M}$ ) kunnen optreden.

Omdat de magnetisatiekromme, die zo zonder fluxsprongen doorlopen wordt grote gelijkenis vertoonde met de krommen, welke beschreven kunnen worden met relatie (V.1.1), gingen wij ertoe over om te proberen deze kromme te beschrijven. Daartoe gebruikten wij de volgende hypothese: Indien de door ons voorgestelde pinnende kracht (V.2.3) als resultaat heeft, dat

$$J_c(r) (B(r) + B_0) > \alpha \quad (\text{V.6.1})$$

is, dan wordt het verband tussen  $B(r)$  en  $J_c(r)$  gegeven door:

$$J_c(r) (B(r) + B_0) = \alpha. \quad (\text{V.6.2})$$

Substitueren wij:

$$J_c(r) = \frac{1}{4\pi} \frac{\partial H(r)}{\partial r} = \frac{1}{4\pi(1 + \mu(r))} \frac{\partial B(r)}{\partial r} \quad (\text{V.6.3})$$

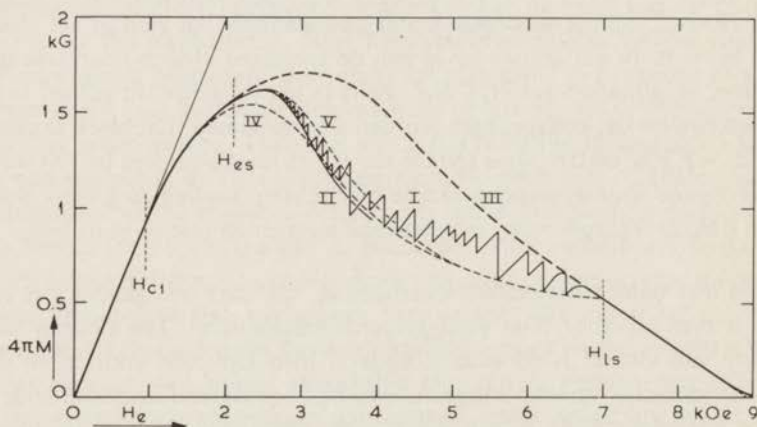
in (V.6.1), dan verkrijgen wij, met de relatie (V.2.6), de waarden van  $B(r)$ , waarvoor de relatie (V.6.2) gebruikt moet worden:

$$B_{e,s} < B(r) < B_{l,s} \quad (\text{V.6.4})$$

met

$$B_{e,s} + B_{l,s} = H_{c2} - B_0. \quad (\text{V.6.5})$$

In figuur (V.8) zijn een tweetal, op voornoemde wijze berekende, magnetisatiekrommen vergeleken met de experimentele krommen in het eerste kwadrant van de hystereselus bij 1,2°K.



Figuur V.8

Magnetisatiekrommen bij 1,2°K: I, experimentele kromme ( $dH_e/dt \approx 1000 \text{ Oe sec}^{-1}$ ; preparaat in He-gas); II, experimentele kromme ( $dH_e/dt \approx 150 \text{ Oe sec}^{-1}$ ; preparaat in He-bad). III, berekende kromme, op de in paragraaf (V.4) aangegeven wijze. IV, berekende kromme met de relaties (V.2.6) en (V.6.6);  $B_0 = 600 \text{ G}$ ,  $\alpha = 14,5 \cdot 10^7 \text{ G}^2 \text{ cm}^{-1}$ . V, overeenkomstig IV;  $B_0 = 0$ ,  $\alpha = 13,4 \cdot 10^7 \text{ G}^2 \text{ cm}^{-1}$ .

Kromme I is de waargenomen magnetisatiekromme, wanneer het preparaat zich in het He-gas bevindt en  $dH_e/dt \approx 1000 \text{ Oe sec}^{-1}$  is. Het fluxspronggebied strekt zich uit van 2100 Oe tot 7000 Oe.

Kromme II is gemeten met het preparaat in het vloeibare He en een waarde van  $dH_e/dt \approx 150 \text{ Oe sec}^{-1}$ . De kromme toont, dat geen fluxsprongen optreden



tot  $H_e \approx 4000$  Oe, terwijl zij redelijk door de laagste waarden van  $-4\pi M$  gaat.

Kromme III is de berekende kromme volgens de in paragraaf (V.4) aangegeven methode. Buiten het fluxspronggebied valt zij samen met de waargenomen kromme.

Kromme IV is op overeenkomstige wijze als III berekend, doch voor die waarden van  $B(r)$  waarvoor (V.6.1) geldt, wordt de relatie tussen  $B(r)$  en  $\partial B(r)/\partial r$  gegeven door (V.1.1); welke door (V.6.3) geschreven kan worden als:

$$\frac{1}{4\pi} \frac{B(r) + B_0}{1 + \mu(r)} \frac{\partial B(r)}{\partial r} = \alpha, \quad (\text{V.6.6})$$

waarin  $\alpha = 14,5 \cdot 10^7 \text{ G}^2 \text{ cm}^{-1}$  en  $B_0 = 600 \text{ G}$ .

Kromme V is op dezelfde wijze als IV berekend, doch nu zijn  $\alpha = 13,4 \cdot 10^7 \text{ G}^2 \text{ cm}^{-1}$  en  $B_0 = 0$  genomen.

Zoals blijkt, vallen de krommen IV en V in het gebied voor  $H_e > 5000$  Oe praktisch samen en gaan zij door de minima van  $-4\pi M$ . Beneden 5000 Oe ligt V duidelijk te hoog, hoewel zij redelijk voldoet aan relatie (V.6.5). Voor kromme IV geldt, dat zij beneden 3000 Oe te laag ligt en bovendien niet voldoet aan (V.6.5).

Uit de resultaten bij andere temperaturen, uiteraard slechts voor  $T_0 \lesssim 3,0^\circ \text{K}$ , blijkt dat  $\alpha$  praktisch onafhankelijk van de temperatuur is. Het is dus mogelijk met de twee constanten  $\alpha$  en  $\beta(0)$  het fluxspronggebied in het eerste kwadrant aan te geven.

De berekeningen omtrent de fluxverdeling in de draden tijdens het doorlopen van het tweede kwadrant wijzen erop, dat de eerste fluxsprong optreedt bij die waarde van  $H_e$ , waarvoor in de gehele draad (V.6.1) geldt. Voegen wij hier nog aan toe het feit, dat het onmogelijk lijkt om in het eerste kwadrant voor  $H_e > H_e^*$  de fluxsprongen te vermijden, dan zijn wij geneigd het optreden van fluxsprongen toe te schrijven aan een kritische waarde van de Lorentzkrachtdichtheid; hoe groter het gebied is, waarin deze kritische krachtdichtheid overschreden wordt – ten gevolge van het pinnende mechanisme, gepresenteerd in paragraaf (V.2) – hoe groter de kans op fluxsprongen. Het is ons echter niet gelukt om een aanvaardbaar mechanisme te vinden, dat tot zo'n kritische krachtdichtheid zou kunnen leiden, zodat wij op dit moment slechts willen suggereren, dat  $J_c(r) B(r) = \text{constant}$  de gunstigste verdeling der flux beschrijft om te voldoen aan de eis:  $\Delta E(H_e) = \Delta E_n$ .

#### REFERENTIES

- 1) K. Mendelssohn, Proc. Roy. Soc. (London) **A152**, 34 (1935).
- 2) K. Mendelssohn en J. R. Moore, Nature **135**, 826 (1935).
- 3) C. P. Bean, Phys. Rev. Letters **8**, 250 (1962).
- 4) C. P. Bean, M. V. Doyle en A. G. Pincus, Phys. Rev. Letters **9**, 93 (1962).

- 5) C. J. Gorter, *Phys. Letters* **1**, 69 (1962); **2**, 26 (1962).
- 6) P. W. Anderson, *Phys. Rev. Letters* **9**, 309 (1962).
- 7) Y. B. Kim, C. F. Hempstead en A. R. Strnad, *Phys. Rev. Letters* **9**, 306 (1962).
- 8) A. M. Campbell, J. E. Evetts en D. Dew-Hughes, *Phil. Mag.* **10**, 333 (1964).
- 9) J. Friedel, P. G. De Gennes en J. Matricon, *Appl. Phys. Letters* **2**, 119 (1963).
- 10) H. E. Cline, C. S. Tedmon Jr. en R. M. Rose, *The Phys. Rev.* **137**, A1767 (1965).
- 11) W. A. Fietz, M. R. Beasley, J. Silcox en W. W. Webb, *The Phys. Rev.* **136**, A335 (1964).
- 12) H. E. Cline, R. M. Rose en J. Wulff, *J. Appl. Phys.* **37**, 1 (1966).
- 13) L. N. J. de Jong en B. S. Blaisse, *Physica* **31**, 317 (1965).
- 14) C. J. Gorter, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 27 (1964).
- 15) K. Maki, *Physics* **1**, 21 (1964).

## SUMMARY

Since the development of type II superconducting materials which are able to carry large supercurrent densities (e.g. niobium-zirconium, niobium-tin and vanadium-gallium), there is a growing interest in the irreversible behaviour of superconductors of the second kind in an external magnetic field. This ability to carry large current densities in the mixed superconductive state, together with a large value of  $H_{c2}$ , is of great importance for the fabrication of superconducting coil magnets. The high current carrying capacity may be ascribed to pinning of fluxons by lattice imperfections. As a result of the pinning, gradients in the flux distribution will arise. The motion of fluxons upon variation of the magnetic field may lead to a considerable dissipation of heat. In certain circumstances it is even possible that sudden avalanches of flux („flux jumps”) occur, leading to a sharp increase of the temperature. Thus the pinning, which is on the one hand a necessary condition for the conduction of large supercurrents, may lead on the other hand to a sudden destruction of them.

These irreversible magnetization processes of impure superconductors are the subject of the measurements described in this thesis. In order to avoid the use of very high external fields, impure Nb-wire is investigated instead of the, above mentioned, technically important materials. The experimental set-up, described in Ch. II, makes it possible to observe the magnetic moment and the temperature of the sample, consisting of a bundle of parallel wires, as functions of an axial magnetic field. Using a calibration the heat development curve is derived from the temperature curve. Thermodynamics can be applied in a rather successful way, if the magnetic moment and the heat development in the four quadrants of the hysteresisloop are measured simultaneously. At first the value of the critical field  $H_c$  is derived, being defined in analogy to the way in which it has been done for type I superconductors:  $G_n(H_{c2}) - G_s(0) \equiv H_c^2/8\pi$  (see IV.2.5), and secondly the criterium of Gorter for the occurrence of flux jumps ( $\Delta E(H_c) > \Delta E_n$  (paragraph IV.3; fig. IV.3)) is tested. The results show an acceptable value of  $H_c$  and a satisfactory agreement with Gorter's criterium in the first quadrant of the hysteresisloop. The regions where the flux jumps are observed, are given in fig. (III.9).

Comparison with the results of De Sorbo leads to the conclusion that about 0,6 at % oxygen might be present in the niobium (fig. III.7). An other niobium sample showed in the same way to contain 0.4 at % oxygen which proved to be in agreement with a spectro-chemical analysis.

In Ch. V a somewhat refined Bean model is developed with which the magnetization curve (fig. V.6) and the heat development (fig. V.7) are described satisfactorily. The pinning force per cm length of one fluxon has been taken to be proportional to the condensation free energy (rel. V.2.1 and 2); furthermore the concept of local reversibility is used which means that at a certain temperature the local induction  $B(r)$  is in thermodynamic equilibrium with the local field  $H(r)$  (see V.2.4).

In the experimental magnetization curves of the first quadrants at lower temperatures, where flux jumps occur, it proves to be possible to draw a smooth curve through the lowest lying points of  $-4\pi M$  (see fig. III.3 and V.8). This curve is somewhat similar to the one calculated from Kim's relation (V.1.1) which is more or less based on a critical Lorentz force density. A much better description is obtained if Kim's relation is only applied in those regions of the wires where it leads to lower values of  $\partial B/\partial r$  than our pinning relation (V.2.6). From the experiments it appears that the value of the critical Lorentz force density is nearly temperature independent.

A final remark concerns the observation that – at 1.2°K, with the sample immersed in liquid He II and upon changing the external magnetic field very slowly – the experimental magnetization curve is similar to the one drawn through the minima of  $-4\pi M$  in the flux jump region mentioned above. In this case no visible flux jumps occur until the field has attained the value for which there is reason to believe that the flux has reached the centres of the wires. At higher fields the picture is the same as that measured at higher values of  $dH_e/dt$  with the sample surrounded by contact gas. It may be that this observation is a valuable indication for a possible explanation of the flux jump mechanism, but at this moment it is not quite clear how.

