

## MASTER

### Dynamische susceptibiliteitsmetingen aan BiCaSrCuO hoge-temperatuur supergeleiders

Lenczowski, S.K.J.

*Award date:*  
1992

[Link to publication](#)

#### **Disclaimer**

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

#### **General rights**

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

Technische Universiteit Eindhoven,  
Faculteit der Technische Natuurkunde,  
Vakgroep Vaste Stof.

H218(DN)  
Kl. 9  
3x

**DYNAMISCHE SUSCEPTIBILITEITSMETINGEN  
AAN BiCaSrCuO HOGE-TEMPERATUUR  
SUPERGELEIDERS**

**S.K.J. Lenczowski**

Verslag van een afstudeeronderzoek in de groep Coöperatieve  
Verschijnselen van de vakgroep Vaste Stof.

Begeleiding : Ir. J.H.P.M. Emmen  
Afstudeerhoogleraar : Prof. dr. ir. W.J.M. de Jonge

december 1989.

***aan mijn ouders***

## SAMENVATTING

Tijdens het afstudeerwerk dat in dit verslag beschreven is, is het granulaire gedrag van BiCaSrCuO hoge-temperatuur (H-T) supergeleiders bestudeerd. Om de invloed van de microstructuur op de supergeleidende eigenschappen te onderzoeken, zijn  $\chi_{ac}$ - en weerstandsmetingen verricht aan twee gesinterde preparaten, die onder verschillende druk geperst zijn, en aan een preparaat dat via een zone-smeltproces vervaardigd is.

Kenmerken van granulair gedrag zijn voor de gesinterde preparaten goed zichtbaar in de  $\chi_{ac}$ - en weerstandsmetingen. Deze worden geïnterpreteerd aan de hand van een granulair model van Clem, waarin de H-T supergeleiders bestaan uit supergeleidende korrels, die gescheiden worden door niet-magnetisch intergranulair materiaal. Bij voldoende lage temperatuur kan er een weerstandsloos percolatiepad en macroscopisch diamagnetisme ontstaan als gevolg van (Josephson-) koppeling tussen de korrels. Zo'n koppeling is in de metingen waargenomen. Het onder hoge druk geperste (2122) preparaat had een koppelingstemperatuur van  $T_{cJ} = 76$  K, 16 K hoger dan die van het onder normale druk geperste (1112) preparaat, hetgeen duidt op een betere koppeling. Dit komt ook tot uiting in de, m.b.v. het model van Clem afgeschatte, intergranulaire kritische stroomdichtheid  $j_{cJ} : j_{cJ} \approx 10^6 \text{ Am}^{-2}$  voor het (2122)-preparaat en  $j_{cJ} \approx 7 \times 10^4 \text{ Am}^{-2}$  voor het (1112)-preparaat. In beide gevallen geldt  $R=0 \text{ } \Omega$  bij  $T \approx T_{cJ}$ .

Het granulaire gedrag van het zone-gesmolten preparaat komt veel minder duidelijk naar voren. Het preparaat is veel dichter dan de gesinterde, waardoor een veel sterkere koppeling mogelijk is. Er wordt voor het zone-gesmolten preparaat een  $T_{cJ} \approx T_c (=92 \text{ K})$  gemeten. De verschillen met de gesinterde preparaten (en ook tussen de twee gesinterde preparaten onderling) kunnen worden toegeschreven aan de afwijkende microstructuren, ontstaan door de verschillende vervaardigingsprocessen.

Metingen van de verliezen m.b.v. het imaginaire gedeelte  $\chi''_{ac}$  van de dynamische susceptibiliteit zijn gedaan aan het onder hoge druk geperste (2122) preparaat. Deze experimenten tonen aan dat de intragranulaire verliezen veroorzaakt worden door (thermisch geactiveerde) flux-flow vanwege de sterke frequentieafhankelijkheid en het ontbreken van  $h_{ac}$ -afhankelijkheid. Flux-pinning verliezen zouden juist geen frequentieafhankelijkheid geven, terwijl hier de amplitude van het wisselveld wel van invloed is.

## INHOUD

	<u>blz.</u>
<b>Samenvatting</b>	iii
<b>Inhoud</b>	iv
<b>Hoofdstuk 1 :    Inleiding</b>	1
<b>Hoofdstuk 2 :    Theorie</b>	4
2.1           Eigenschappen van type-II supergeleiders	4
2.2           Het critical-state model	8
2.3           Granulaire eigenschappen van H-T supergeleiders; het granulaire model van Clem	12
2.4           AC-verliezen in type-II supergeleiders	22
2.4.1        Inleiding	22
2.4.2        Flux-flow verliezen	26
2.4.3        Flux-pinning verliezen	32
2.5           Het gekoppelde kringmodel van Ishida	42
2.6           Flux-kruip en het TAFF-model (thermally assisted flux flow)	47
<b>Hoofdstuk 3 :    Meetopstelling</b>	53
<b>Hoofdstuk 4 :    Meetresultaten en discussie</b>	56
4.1           Inleiding	56
4.2           Gesinterde en zone-gesmolten BiCaSrCuO preparaten	56
4.3           Het onder hoge druk geperste en gesinterde BiCaSrCuO preparaat	62
<b>Hoofdstuk 5 :    Conclusies en aanbevelingen</b>	69
<b>Hoofdstuk 6 :    Literatuur</b>	70
<b>Nawoord</b>	74

## HOOFDSTUK 1 : INLEIDING

Supergeleiding is geen nieuw verschijnsel. Al in 1911 ontdekte Kamerlingh Onnes [KAM 11] dat kwik een supergeleidende overgangstemperatuur  $T_c = 4.16$  K bezat. Sindsdien bleken vele metallische elementen en legeringen supergeleiders te zijn beneden een bepaalde temperatuur. Tot 1986 was  $Nb_3Ge$  recordhouder met een  $T_c$  van 23 K. Supergeleidende oxiden waren toen al bekend, maar spraken met  $T_c$ 's rond de 12 K niet tot de verbeelding. Dit veranderde drastisch met de melding van Bednorz en Müller [BED 86] dat een bepaalde samenstelling van  $LaBaCuO$  een overgangstemperatuur boven 30 K had. Vanaf deze ontdekking steeg de  $T_c$  van allerlei keramische supergeleiders snel, omdat overal op de wereld onderzoek opgestart werd. Het eerstvolgende commerciële succes was de ontdekking van supergeleiding boven 77 K, het kookpunt van stikstof, door Wu et al. [WU 87]. Er werd voor  $YBa_2Cu_3O_7$  een  $T_c = 92$  K genoteerd. Dit werd gevolgd door supergeleiding bij 110 K in het  $BiCaSrCuO$ -systeem, terwijl het huidige record 125 K bedraagt voor  $Tl_2Ba_2Ca_2Cu_3O_{10}$ , gevonden door Parkin et al. [PAR 88]. Op dit moment is supergeleiding bij kamertemperatuur echter nog niet binnen afzienbare tijd te verwachten.

De kristalstructuren van de Bi- en Tl-systemen lijken op elkaar. In dit verslag worden alleen metingen aan  $BiCaSrCuO$ -supergeleiders gepresenteerd, omdat Bi, in tegenstelling tot Tl, niet giftig is en het Bi-systeem toch een hoge  $T_c$  heeft. Als gevolg van het sinterproces kennen de nieuwe, polykristallijne hoge-temperatuur (H-T)-supergeleiders een granulaire structuur. De relatie tussen deze granulaire structuur en de supergeleidende eigenschappen is met name interessant, omdat eventuele praktische toepassingen ervan afhangen. Zo blijkt bijvoorbeeld het granulaire karakter de maximale macroscopische stroomdichtheid drastisch te beperken. Daarnaast zijn de intrinsieke magnetische eigenschappen van H-T-supergeleiders analoog aan die van conventionele type-II supergeleiders. Er zijn twee kritische velden, waarvan vanwege de korte coherentielengte  $B_{c2}(T=0 \text{ K})$  erg groot is (schattingen uit de literatuur geven  $B_{c2} > 100$  Tesla). Voor een aangelegd veld groter dan  $H_{c1}$  zullen er dus fluxlijnen in de H-T-supergeleider binnendringen. Onder invloed van een stroom, loodrecht op de magnetische inductie, zal er een Lorentzkracht op de fluxlijnen uitgeoefend worden. Zonder pinning gaan de fluxlijnen dan bewegen en energie dissiperen, zodat de mogelijkheden voor praktische toepassingen afnemen. Defecten in de kristalstructuur kunnen gelukkig als pinningplaatsen optreden. Veel

problemen van fundamentele en technische aard hieromtrent zullen echter nog opgelost moeten worden, voordat de H-T-supergeleiders massaal hun toepassingen zullen vinden.

Welnu, inter- en intragranulaire effecten kunnen uitstekend onderzocht worden met behulp van dynamische susceptibiliteitsmetingen ( $\chi_{ac}$ ). De verschillende stadia van de supergeleidende overgang naar volledig diamagnetisme komen vooral tot uiting in  $\chi'$ , het reële gedeelte van  $\chi_{ac}$ , terwijl  $\chi''$ , het imaginaire deel van  $\chi_{ac}$ , een goede maat is voor de verliezen (inter- en intragranulair). Om de invloed van de microstructuur op de granulaire effecten te onderzoeken, zijn er dynamische susceptibiliteitsmetingen verricht aan een aantal BiCaSrCuO-preparaten met verschillende samenstelling en microstructuur. Het blijkt bijvoorbeeld dat een preparaat dat vervaardigd is met behulp van een zone-smeltproces een geheel ander  $\chi_{ac}$ -gedrag vertoont dan een 'normaal' gesinterd preparaat. Om de juistheid van verschillende theorieën en modellen, die de laatste tijd ontwikkeld zijn, na te gaan, zijn in de metingen parameters als de amplitude  $h_0$  en de frequentie  $\omega$  van het aangelegde wisselveld en een eventueel statisch DC-veld  $H_{DC}$  gevarieerd. Met name krijgt het granulaire model van Clem [CLE 88] de aandacht, waarin de H-T supergeleider bestaat uit een verzameling supergeleidende korrels, die gescheiden worden door niet-magnetisch intergranulair materiaal. Dit model is erg interessant, want het doet directe uitspraken over het verloop van o.a. de dynamische susceptibiliteit en de kritische stroomdichtheid als functie van de temperatuur. Tevens veronderstelt het model dat er koppeling tussen de korrels mogelijk is (zgn. Josephson-juncties), zodat bij voldoende lage temperatuur een weerstandsloos percolatiepad kan ontstaan. Met het oog hierop zijn er ook weerstandsmetingen aan de BiCaSrCuO-preparaten verricht.

Over het ontstaan en de aard van de verliezen, die in H-T-supergeleiders optreden bij het in- en uitstromen van magnetische flux, bestaan verschillende modellen. Theorieën als flux-flow, flux-kruip en (meer recent) thermisch geactiveerde ontpinning van fluxlijnen komen in dit verslag daarom eveneens aan bod. Frequentie-,  $h_0$ - en  $H_{DC}$ -afhankelijkheden van  $\chi_{ac}$  geven n.l. ook aanwijzingen welke mechanismen reële bijdragen kunnen leveren aan de grootte van de verliezen. Een fraaie uiteenzetting over AC-verliezen in type-II supergeleiders [CLE 79] is gegeven in §2.4. De niet direct geïnteresseerde lezer kan wellicht §2.4.1 in eerste instantie overslaan en zich concentreren op de uitdrukkingen die gegeven worden voor  $\chi'$  en  $\chi''$  in de gevallen dat flux-flow en oppervlakte- en bulkpinning de oorzaak van de ver-

liezen zijn (vgl. 2.53, 2.79 en 2.88). In tabel 2.1 zijn de belangrijkste resultaten van §2.4 met daarin de bovengenoemde  $\omega$ -,  $h_0$ - en  $H_{DC}$ -afhankelijkheden samengevat.

De in deze inleiding kort aangestipte problemen en verrichte metingen komen nu als volgt aan bod. In hoofdstuk 2 worden de basiseigenschappen van type-II supergeleiders alsmede de theoretische modellen, voor zover nodig bij de interpretatie van de metingen, ter beschrijving van granulaire en niet-granulaire effecten in H-T-supergeleiders besproken. De gebruikte meetopstelling voor  $\chi_{ac}$ , die in onze eigen vakgroep is ontwikkeld, wordt in hoofdstuk 3 beschreven. Hoofdstuk 4 is gereserveerd voor de presentatie van de verrichte metingen en de discussie, terwijl tot slot in hoofdstuk 5 enkele conclusies en aanbevelingen aan de hand van dit onderzoek zullen worden gegeven.



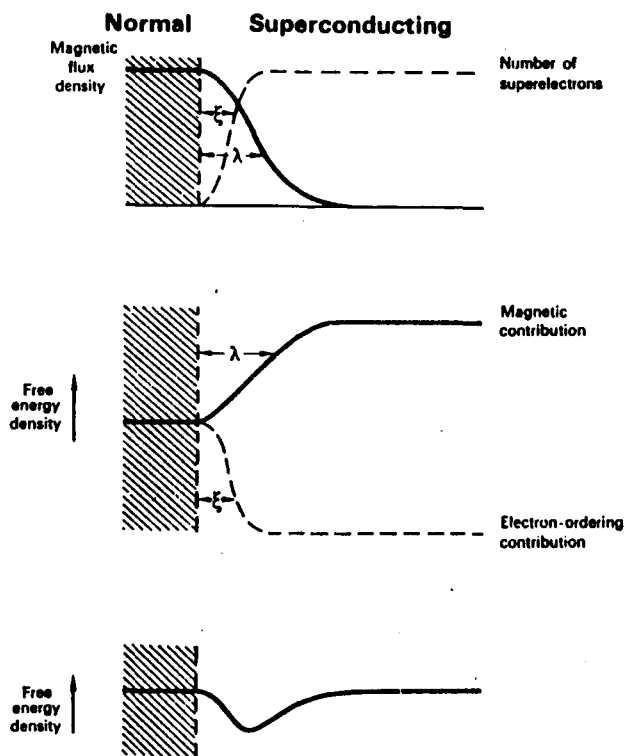
## HOOFDSTUK 2 : THEORIE

### §2.1 : Eigenschappen van type-II supergeleiders

Een type-II supergeleider onderscheidt zich van de fenomenologisch betrekkelijk eenvoudig te begrijpen type-I supergeleider, doordat er sprake is van een negatieve grensvlakenergie (grensvlak tussen normaal- en supergeleidend gebied). Dit betekent dat de totale vrije energie, die de som is van een bulk- en een oppervlaktebijdrage, kan afnemen als er grensvlakken tussen normale en supergeleidende gebieden ontstaan. Het magnetisch veld waarbij het energetisch gunstig wordt om normale gebieden te vormen, omdat de afname in de vrije energie aan het grensvlak groter geworden is dan de toename van het bulkmateriaal, wordt het lage kritische veld  $H_{c1}$  genoemd. Deze normale gebieden zullen parallel aan het extern aangelegd magnetisch veld liggen, zodanig dat de verhouding tussen grensooppervlak en volume van de normale, cilindervormige gebiedjes maximaal is. Men zegt nu dat de (type-II) supergeleider zich in de mixed-state bevindt.

In figuur 2.1 is het ontstaan van de negatieve grensvlakenergie bij type-II supergeleiders schematisch weergegeven. Het laat zien dat bij type-II supergeleiders de coherentielengte  $\xi$ , een karakteristieke lengte waarover het aantal superelektronen aanzienlijk kan variëren, kleiner is dan de penetratiediepte  $\lambda$ , op zijn beurt een maat voor de indringdiepte van het magnetisch veld in de supergeleider. In de meeste pure metalen is de coherentielengte  $\xi_0$  ongeveer  $10^{-4}$  cm, veel groter dan de penetratiediepte. Bij onzuivere metalen en ook legeringen kan de afname van de vrije weglengte van de elektronen er gemakkelijk voor zorgen dat de coherentielengte dermate gereduceerd wordt, dat deze zelfs kleiner wordt dan de penetratiediepte. Onzuivere metalen en legeringen zijn derhalve vaak voorbeelden van type-II supergeleiders. Hoge-temperatuur supergeleiders worden vooralsnog ook tot deze categorie gerekend.

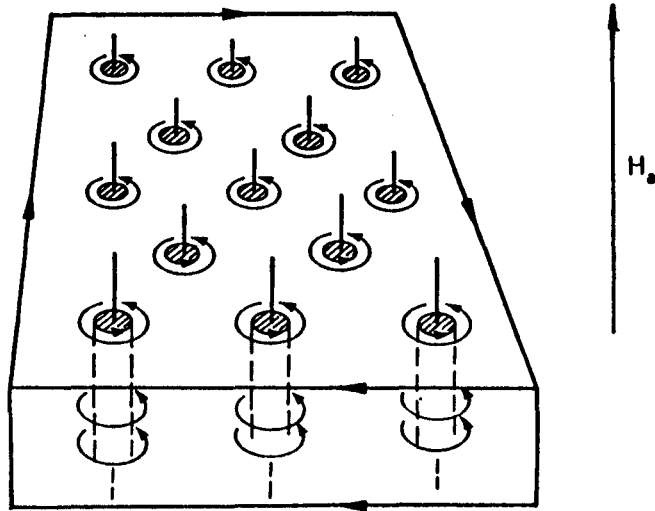
We kunnen ons de mixed-state als volgt voorstellen. In de supergeleider bevinden zich normale kernen parallel aan het aangelegd magnetisch veld  $H_a$ . Elke kern bevat een fluxquantum  $\Phi_0 = h/2e$  ( $= 2.1 \times 10^{-15}$  Wb), die gegenereerd wordt door een vortexstroom, die om de kern heen loopt en een tegengestelde draairichting heeft aan de oppervlaktestromen die voor het bulk-diamagnetisme zorgen. Zodoende heeft



**fig. 2.1 :** *Negatieve grensvlakenergie; de coherentielengte  $\xi$  is kleiner dan de penetratiediepte  $\lambda$ .*

zo'n fluxquantum in de normale kern dezelfde richting als  $H_a$ . Figuur 2.2 laat een dergelijke configuratie zien. Daarnaast is in figuur 2.3 de verdeling van het aantal superelektronen en de veldverdeling rond een normale kern weergegeven. In de thermische evenwichtssituatie en zonder fluxpinning, waar in §2.6 nader op ingegaan zal worden, wordt het vortexrooster bepaald door de afstotende wisselwerking als de kernen elkaar naderen. Als we nu het aangelegd magnetisch veld verhogen, zullen de normale kernen dichter bijeen komen, tegen de afstotende krachten in. Uiteindelijk gaan de kernen elkaar raken en overlappen, totdat bij  $H_{c2}$ , het hoge kritische veld, de orderparameter (het aantal superelektronen) overal nul geworden is. De supergeleider is dan in de normale toestand overgegaan.

De waarden van  $H_{c1}$  en  $H_{c2}$  worden in essentie bepaald door de grootte van de Ginzburg-Landau constante  $\kappa = \lambda/\xi$ . Bij gelijke  $H_c$  geldt dat hoe groter  $\kappa$  is, des te kleiner  $H_{c1}$  en des te groter  $H_{c2}$ . Definiëren we het thermodynamische kritische veld  $H_c$  als :



**fig. 2.2 :** De mixed-state met normale kernen en vortexstromen, die een tegengestelde draairichting hebben aan de oppervlaktestromen, die voor het bulk-diamagnetisme zorgen.

$$H_c = \left\{ \frac{2}{\mu_0} (g_n - g_s) \right\}^{\frac{1}{2}}, \quad (2.1)$$

waarin  $(g_n - g_s)$  het verschil in de Gibbs vrije-energiedichtheid tussen de normale en de supergeleidende toestand is, dan tonen Ginzburg en Landau [GIN 50] aan dat :

$$H_{c1} = \frac{1}{\kappa\sqrt{2}} H_c \quad (2.2a)$$

$$H_{c2} = \kappa\sqrt{2} H_c. \quad (2.2b)$$

H-T supergeleiders bezitten ook twee kritische velden. Daarnaast grijpen veel modellen die het magnetisch gedrag van H-T supergeleiders proberen te beschrijven, terug op de basis zoals boven beschreven. Daarom worden H-T supergeleiders veelal tot de type-II supergeleiders gerekend, hetgeen eerder reeds opgemerkt is. Het is echter niet zo dat H-T supergeleiders zondermeer aan b.v. de Ginzburg-Landau vergelijkingen voor een traditionele type-II supergeleider voldoen. In §2.3 wordt een model voor de beschrijving van H-T supergeleiders meer in detail besproken.

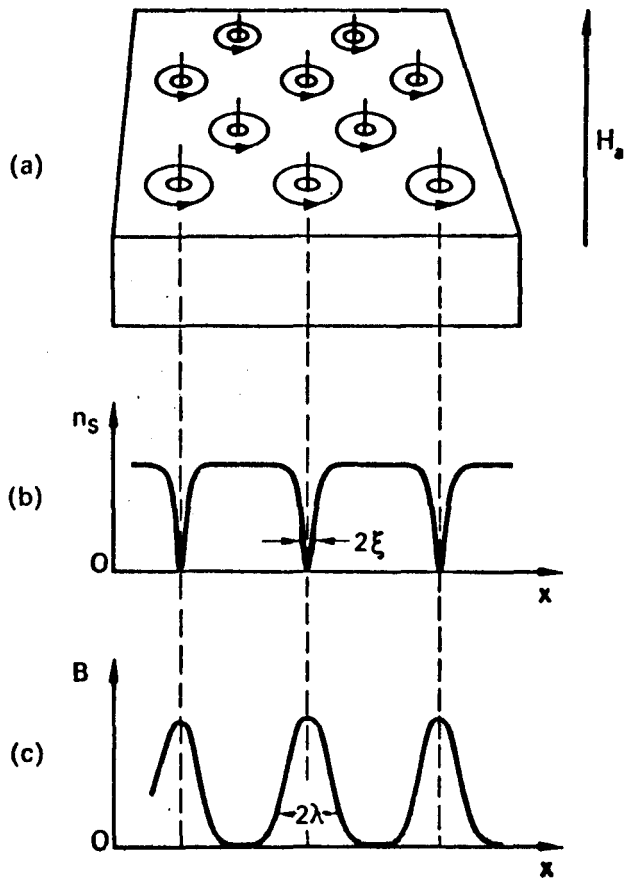


fig. 2.3 :

*De mixed-state in een magnetisch veld  $H_a > H_{c1}$ .*

*(a) Verdeling van normale kernen en bijbehorende vortexstromen. (b) Verdeling van de concentratie superelektronen. (c) Verdeling van de magnetische flux.*

## §2.2 : Het critical-state model

We beschouwen nu het geval, waarin pinning van magnetische flux in staat is drijvende krachten ( $F_d$ ) te weerstaan. Deze krachten werken vermoedelijk op de individuele vortices. Toch kunnen we een meer macroscopisch beeld voor ogen nemen en verwachten dat magnetische flux in gecorreleerde bundels bewegen als de drijvende kracht de pinningkracht ( $F_p$ ) overschrijdt, omdat de beweging van de individuele vortices grotendeels wordt bemoeilijkt door hun onderlinge afstoting.

Wanneer een extern magnetisch veld  $H_a < H_{c1}$  wordt aangelegd, dan zullen er in de supergeleider als gevolg van het Meissnereffekt stromen geïnduceerd worden, die lopen in een laagje ter dikte  $\lambda$ . Wordt echter  $H_a > H_{c1}$ , dan treden er fluxlijnen binnen. De drijvende kracht op het vortexrooster is nu de Lorentzkracht :

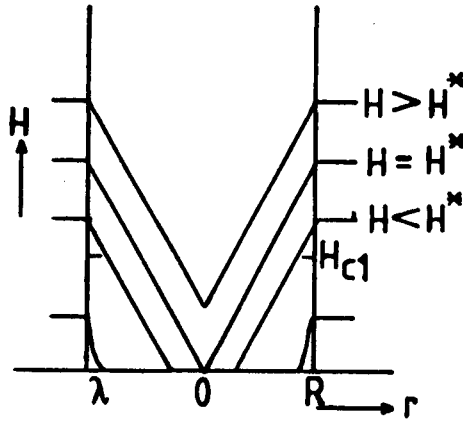
$$\vec{F}_d = \vec{j} \times \vec{B}, \quad (2.3)$$

waarin  $\vec{j}$  voorlopig een extern aangelegde stroomdichtheid is. Beweging van het vortexrooster heeft dissipatie tot gevolg, zodat deze nul is zolang het vortexrooster op de een of andere wijze gepind is :  $F_d \leq F_p$ . De bijbehorende stroomdichtheid, waarbij het vortexrooster nog juist niet in beweging wordt gezet, heet de kritische stroomdichtheid  $\vec{j}_c$ . Als de fluxlijnen in de supergeleider dus op geen enkele manier gepind worden ( $\vec{F}_p = \vec{0}$ ), dan geldt dat  $\vec{j}_c = \vec{0}$  voor magnetische velden groter dan  $H_{c1}$ .

Keren we terug naar de situatie waarin  $\vec{F}_p \neq \vec{0}$ . De pinningkracht verstoort het vortexrooster, waardoor er in de supergeleider een gradiënt in de magnetische fluxdichtheid ontstaat. Deze gradiënt heeft een geïnduceerde stroom tot gevolg, die voor een cilindervormig preparaat gegeven wordt door de Maxwellrelatie :

$$\vec{j} = \mu_0^{-1} \frac{\partial \vec{B}}{\partial \vec{r}}. \quad (2.4)$$

Hierin is  $B = n\Phi_0$ , met  $n$  de dichtheid van de fluxdraden. In figuur 2.4 is een situatieschets voor een supergeleidende cylinder met straal  $R$  gegeven. In het geval dat  $j$  en  $B$  groot zijn volgt uit (2.3) dat  $F_d > F_p$ . Hier is sprake van als  $H_a > H_{c1}$  en  $j > j_c$ . Het vortexrooster gaat nu bewegen, dwz vortices zullen dieper in de



**fig. 2.4 :** De critical-state in een cilindrische supergeleider. Voor de eenvoud is hier gebruik gemaakt van het Bean-model, waarin  $j_c \sim \partial B / \partial r = \text{constant}$ .

supergeleider dringen, om zo de gradiënt in fluxdichtheid te reduceren. Dit proces zal net zolang plaatsvinden, totdat  $F_d \leq F_p$ , ofwel  $j \leq j_c$ . Het gedeelte van de supergeleider waarvoor nu geldt  $j = j_c$  bevindt zich in de critical-state. De pinningkracht compenseert de drijvende kracht.

Het mag duidelijk zijn dat  $F_p$  geen constante is, omdat dit zou leiden tot een oneindig grote  $j_c$  bij afwezigheid van een magnetisch veld. Bean [BEA 62] omzeilde dit probleem en veronderstelde  $j_c = \text{constant}$ . In dit vereenvoudigde model zijn de fluxdichtheidprofielen rechte lijnen met een helling  $\mu_0 j_c$ . In figuur 2.4 is deze benadering reeds verwerkt. Uit de figuur blijkt tevens dat  $H^*$ , gegeven door

$$H^* = j_c R, \tag{2.5}$$

het maximale aangelegde veld is dat volledig van het midden van de supergeleider afgeschermd kan worden. Het is dus tevens het veld waarboven het gehele preparaat zich in de critical state bevindt. In figuur 2.5 zijn naast de verdeling van de fluxdichtheid ook de stroomdichtheid en de magnetisatiecurve weergegeven.

Als een aangelegd magnetisch veld  $H_0$  vervolgens weer wordt verwijderd, dan blijkt uit figuur 2.6 dat er een aanzienlijke hoeveelheid flux in de supergeleider achter kan blijven. Deze hoeveelheid achterblijvende flux wordt in dit model volledig bepaald

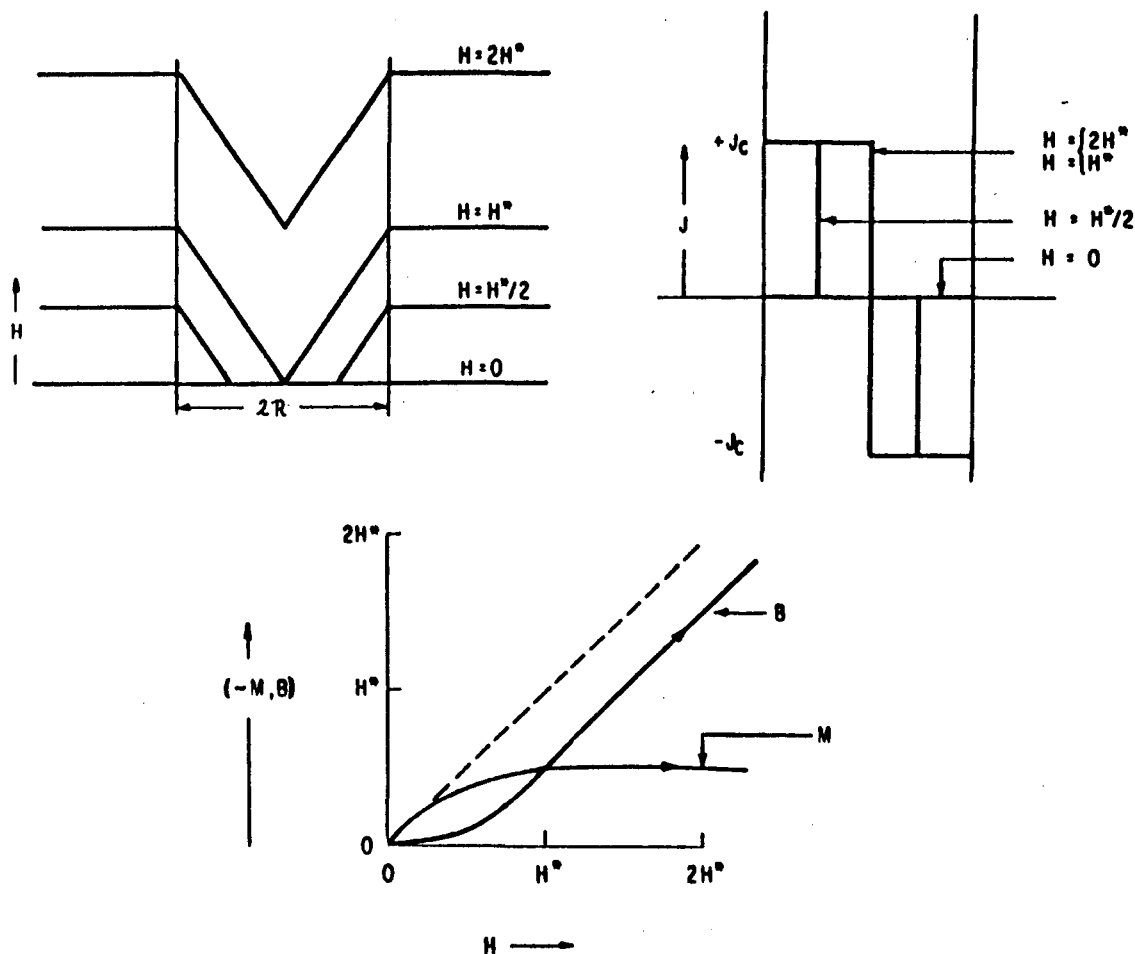


fig. 2.5 : *Veldverdeling, stroomdichtheid en magnetisatiecurve voor velden 0,  $H^*/2$ ,  $H^*$  en  $2H^*$  parallel aan een supergeleidende cylinder.  $j_c$  is onafhankelijk van het veld verondersteld.*

doordat enerzijds aan de rand van de supergeleider thermodynamisch evenwicht moet gelden en anderzijds door pinning van vortices dat  $\partial B/\partial r \sim j_c$ . Er is dan sprake van hystereselussen en irreversibiliteit. Het energieverlies  $Q$  per eenheid van volume wordt gegeven door het oppervlak binnen de hystereselus  $\int B dH$  en voor velden  $H_0 < H^*$  is deze evenredig met  $H_0^3$ . Als  $H_0 > H^*$  geldt  $Q \sim H_0$  [BEA 64]. Een meer microscopische gedachte achter deze verliezen kan zijn dat gedurende de verandering van de magnetisatie binnen de supergeleider elektrische velden ontstaan. De lokale warmteverliezen zijn dan het produkt van deze elektrische velden en de lokale stroomdichtheid. Overigens moet worden opgemerkt dat, ook volgens Bean zelf, de critical-state met  $j=j_c$  in de gehele supergeleider niet dient te worden verbonden aan een microscopisch beeld. Dit is duidelijk, aangezien in dit model geen uitspraak wordt gedaan over een microscopisch mechanisme van de

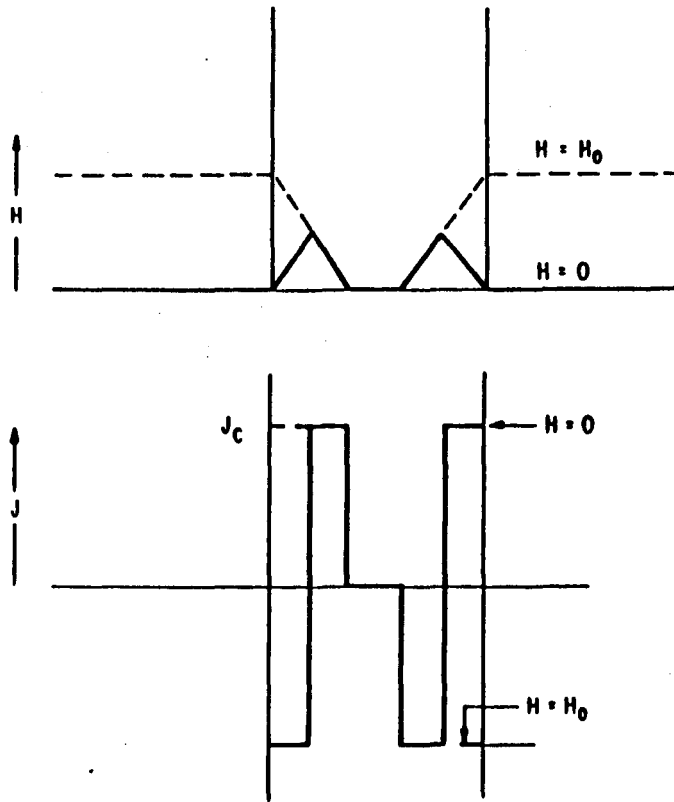


fig. 2.6 : Fluxdichtheid- en stroomdichtheidprofiel in een supergeleidende cylinder, nadat een veld  $H_0$  is aangelegd en weer verwijderd.

supergeleiding.



§2.3 : Granulaire eigenschappen van H-T supergeleiders; het granulaire model van Clem

Nadat Bednorz en Müller [BED 86] een nieuwe klasse supergeleiders hadden ontdekt, werd het duidelijk dat deze supergeleiders regelmatig granulair gedrag vertoonden als gevolg van het sinteringproces. Er wordt gedacht dat elektrische en magnetische eigenschappen verklaard kunnen worden met behulp van een model, waarin de supergeleiders bestaan uit korrels supergeleidend materiaal, die onderling een zwakke (Josephson) koppeling hebben. Clem [CLE 88] introduceerde onlangs een dergelijk model, dat in deze paragraaf aan de orde zal komen.

In het model van Clem bestaat de H-T supergeleider uit korrels van stoichiometrisch materiaal, gescheiden door lagen van niet-stoichiometrisch intergranulair materiaal, dat niet supergeleidend is. De identieke, supergeleidende korrels liggen op een kubisch rooster met roosterparameter  $a_0$  (zie figuur 2.7). Tussen de korrels onderling bestaat er een naaste-buur wisselwerking als gevolg van een zwakke koppeling. Omdat deze koppeling eigenschappen van een Josephson-junctie worden toegedicht, wordt de koppeling vaak een Josephson-koppeling genoemd en bezit een maximum Josephsonstroom  $I_0$ . Er wordt nu onderscheid gemaakt tussen effecten die afkomstig zijn van het supergeleidend

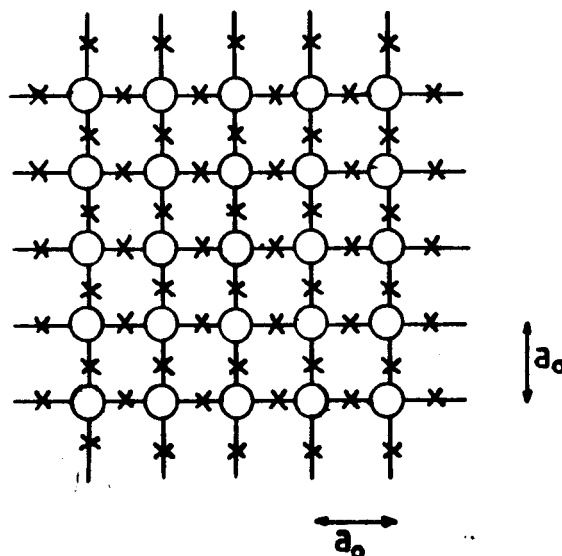


fig. 2.7 : Rooster van zwak-gekoppelde, supergeleidende korrels met roosterparameter  $a_0$ .

zijn van de korrels zelf (de intra-granulaire effecten) en effecten die voortvloeien uit de onderlinge koppeling (de inter-granulaire effecten). In een dergelijk beeld spelen twee energiematen een belangrijke rol :

$$E_J = \frac{\hbar}{2e} I_0 \tag{2.6a}$$

$$E_g = \frac{1}{2} \mu_0 H_{cg}^2 V_g \tag{2.6b}$$

Hierin is  $E_J$  de Josephson koppelingsenergie tussen twee aangrenzende korrels (de microscopische BCS-theorie voorspelt  $I_0 = \pi\Delta/2e$ ,  $\Delta$ =energiegap), en  $E_g$  de intragranulaire condensatieënergie van een korrel.  $H_{cg}$  is het thermodynamisch kritisch veld en  $V_g$  het volume van een supergeleidende korrel. De beschrijving van de elektrische en magnetische eigenschappen van de granulaire supergeleider vindt nu plaats aan de hand van de dimensieloze parameter  $\epsilon = E_J/2E_g$ , op een manier die doet denken aan de aanpak van Ginzburg en Landau. Dezen schreven voor een traditionele (type-I of II) supergeleider de vrije energie als een machtreeks van de ordeparameter  $\psi$ , die nul wordt bij de supergeleidende overgang. De coëfficiënten van de machtreeks zijn dan reguliere functies van de temperatuur  $T$  [TIN 75b]. In [CLE 87b] wordt nu afgeleid dat  $\epsilon$  ook geschreven kan worden als

$$\epsilon = 2 \frac{\xi_J^2}{a_0^2}, \tag{2.7}$$

met  $\xi_J$  de Ginzburg-Landau temperatuurafhankelijke coherentielengte. De waarde van  $\epsilon$  bepaalt nu de mate van koppeling tussen de korrels en we onderscheiden voor het gemak twee limiet-situaties :  $\epsilon \ll 1$  en  $\epsilon \gg 1$ .

In het geval  $\epsilon \ll 1$  is er sprake van zwakke intergranulaire koppeling. De intergranulaire stromen zijn te klein om de ordeparameter wezenlijk te onderdrukken, zodat de kritische stroomdichtheid  $j_c$  eenvoudig wordt bepaald door de maximale stroomdichtheid van de Josephsonjunctie  $j_0 = I_0/a_0^2$ . De Ambegaokar-Baratoff theorie [AMB 63] is nu geldig en voorspelt :

$$I_0(T) = \frac{\pi\Delta(0)}{eR_n} F(T) \tag{2.8a}$$

$$F(T) = \frac{\Delta(T)}{\Delta(0)} \tanh \frac{\Delta(T)}{2k_B T} \tag{2.8b}$$

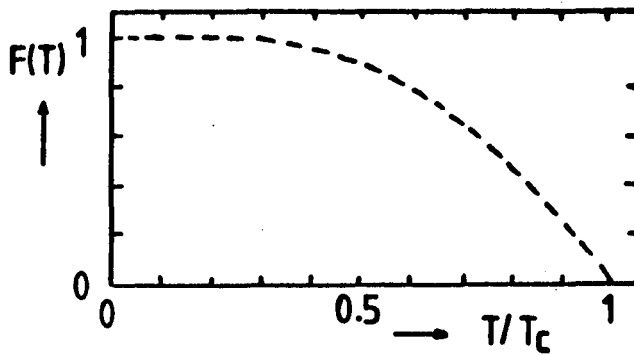


fig. 2.8 :  $F(T)$  tegen de gereduceerde temperatuur.

Hierin is  $\Delta(T)$  de temperatuur afhankelijke gapparameter en  $R_n$  de tunnelweerstand van de Josephsonjunctie in normale toestand. In deze limiet worden de macroscopische transportstroom en de magnetisatie in grote mate bepaald door het gedrag van de Josephson weak-links.

Als  $\epsilon \gg 1$  wordt, hebben we te maken met een sterke intergranulaire koppeling. De intergranulaire stromen zijn zo groot, dat de onderdrukking van de ordeparameter belangrijk wordt. Deze situatie wordt beschreven door de Ginzburg-Landau theorie in de vieze limiet, dwz dat de gemiddelde vrije weglengte  $l$  van de elektronen kleiner wordt dan de coherentielengte [GOR 59]. De Josephson koppelingsenergie speelt dan de rol van de kinetische energie van de superstroom. Het verschil met de theorie in de vieze limiet is dan dat de weerstand van de normale toestand nu wordt vervangen door  $R_n$ . De twee karakteristieke lengten,  $\xi_J$ , de lengteschaal voor de veranderingen in de ordeparameter, en  $\lambda_J$ , de lengteschaal voor veranderingen in het magnetisch veld, zijn beiden groter dan de roosterparameter (en korrelafmeting)  $a_0$  [CLE 87b].

Voor bulkpreparaten wordt de mixed-state vastgelegd door de kritische velden [HU 72] :

$$H_{c1J} = \frac{\Phi_0}{\mu_0 \lambda_J^2} \left\{ \ln\left(\frac{\lambda_J}{\xi_J}\right) + 0.50 \right\} \quad (2.9a)$$

$$H_{c2J} = \frac{2\Phi_0}{\mu_0 \xi_J^2}. \quad (2.9b)$$

$H_{c1J}$  is dan het veld waarbij de eerste vortex in het tussenliggende, niet supergeleidende materiaal binnendringt. Het gehele intergranulaire volume is gevuld met flux als  $H_{c2J}$  bereikt is. De zelfenergie ( $\Phi_0 H_{c1J} a_0$ ) van zo'n vortex in een segmentje ter lengte  $a_0$  zal nu ongeveer gelijk zijn aan de koppelingsenergie  $E_J$ . De kritische stroomdichtheid  $j_c$  wordt bepaald door de mate van pinning van het vortexrooster aan de zgn pinningcentra. In dit beeld is  $j_c$  dus erg afhankelijk van de microstructuur van het preparaat, die voor plaatselijke variatie van de totale vortexenergie zorgt;  $j_c$  zal groot zijn als de lengteschaal van de pinningcentra past bij de coherentielengte en  $j_c$  wordt erg klein als de lengteschaal van de pinningcentra ofwel veel kleiner, ofwel veel groter dan  $\xi_J$  is [EKI 75]. In §2.6 wordt hier nog eens op ingegaan.

De vraag is nu natuurlijk of de nieuwe H–T supergeleiders een zwakke of een sterke koppeling bezitten. Een ruwe schatting verkrijgen we wanneer we de volgende gangbare parameterset voor YBaCuO aannemen :  $H_{cg} = 10^4$  Oe,  $a_0$  (=korrelgrootte) = 1  $\mu\text{m}$  en  $I_0 = 100 \mu\text{A}$ , zodat  $j_0 = 10^4$  A/cm<sup>2</sup>. Mbv de definitie van  $\epsilon$  en vgl (2.6) vinden we dat  $\epsilon \approx 4 \times 10^{-8}$ .  $\epsilon(T)$  divergeert voor  $T = T_c$ . Dit heeft tot gevolg dat nabij  $T_c$  altijd geldt dat  $\epsilon \leq 1$  of  $\epsilon \geq 1$ . In dat temperatuurgebied treedt er een overgang op van een Ambegaokar–Baratoff gedrag naar een Ginzburg–Landau gedrag. De grootte-orde van  $\epsilon$  voor H–T supergeleiders doet vermoeden dat het model van zwak gekoppelde korrels toepasbaar is voor bijna het gehele temperatuurgebied  $0 < T \leq T_c$ .

Er dient echter nog iets in de gaten gehouden te worden. Tot nu toe hebben we steeds impliciet aangenomen dat de fase-coherentie niet verstoord wordt door thermische fluctuaties. Dit is zeker het geval als geldt dat  $E_J \gg k_B T$ . De I–V-karakteristiek van een dergelijke ideale Josephsonjunctie ziet er uit als in figuur 2.9. Wordt  $k_B T \approx E_J$  dan zal er een over de tijd gemiddelde spanning  $\bar{V}$  over de stroomvoerende junctie komen te staan, die zodoende het preparaat als geheel een bepaalde weerstand geeft, zelfs als de individuele korrels allen nog sterk supergeleidend zijn. De spanning  $\bar{V}$  is evenredig met  $d\Delta\phi/dt > 0$ , zodat het faseverschil  $\Delta\phi$  over de junctie niet meer constant is. We spreken nu van thermisch geactiveerde faseslip. Deze zal dicht genoeg bij  $T_c$  altijd plaatsvinden, omdat

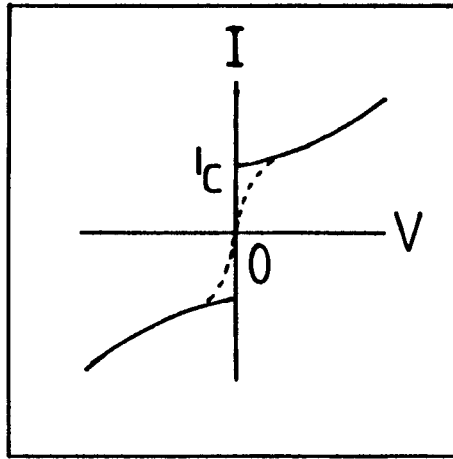


fig. 2.9 : *I-V-karakteristiek van een ideale Josephson-junctie. De stippellijn geeft aan wat er gebeurt als  $k_B T \approx E_J$ .*

$$E_J \sim (T_c - T).$$

De overgangstemperatuur  $T_{cJ}$  wordt grofweg gegeven door :

$$E_J(T_{cJ}) = k_B T_{cJ}. \quad (2.10)$$

Nauwkeuriger berekeningen zijn bv uitgevoerd door Shih et.al. [SHI 84]. Uit de Ambegaokar-Baratoff theorie [AMB 63] volgt voor temperaturen nabij  $T_c$  ( $\epsilon \ll 1$ ):

$$\frac{E_J}{k_B} = (6.35 \times 10^7 \frac{K}{A}) I_0(0) (1 - T/T_c), \quad (2.11)$$

zodat het verschil tussen de kritische temperatuur  $T_c$  en de ontkoppelingstemperatuur  $T_{cJ}$  gegeven wordt door :

$$T_c - T_{cJ} = (1.57 \times 10^{-8} \frac{A}{K}) \frac{T_c^2}{I_0(0)}. \quad (2.12)$$

Deze uitdrukking is geldig als  $I_0(0) \gg 1.57 \times 10^{-8} T_c$ . Uit  $\Delta T = T_c - T_{cJ}$  kan dus  $I_0(0)$  en daarmee  $E_J(0)$  berekend worden.

Om nu magnetische en stroomvoerende eigenschappen van de H–T supergeleiders te beschrijven en te verdelen in intra- en intergranulaire bijdragen, beschouwen we tussen de zwak gekoppelde korrels van anisotroop supergeleidend materiaal een isolator. Voor het geval van proximity juncties, waarin de korrels gescheiden zijn door half-geleidend, normaal geleidend of slecht supergeleidend intergranulair materiaal, dient de temperatuurafhankelijkheid van de intergranulaire kritische stroomdichtheid aangepast te worden, zoals dat in [SHI 84] gebeurt. De koppelingsenergie tussen twee aangrenzende korrels  $i$  en  $j$  wordt dan gegeven door  $E_{ij} = C (1-T/T_c)^2 \exp(-x/\xi_n(T))$ , met  $C$  een constante,  $x$  de afstand tussen de twee korrels en  $\xi_n(T)$  de coherentiellengte van het normale metaal.

Voor temperaturen  $T < T_{cJ}$ , zodat de korrels nog gekoppeld zijn, zal er een macroscopische stroom langs het oppervlak van de supergeleider geïnduceerd worden als een klein magnetisch veld wordt aangelegd. Het aangelegde veld dringt tot op een diepte  $\lambda_g$  in de korrels binnen. Hier beschouwen we  $\lambda_g$  als een scalar. In [KLE 80] en [KOG 81] wordt nader ingegaan op intragranulaire kristallijne anisotropie. Zij definiëren dimensieloze, genormaliseerde massa's  $m_a$ ,  $m_b$  en  $m_c$  ( $m_a m_b m_c = 1$ ) langs de drie principiële assen. Dit gebeurt zo, dat de corresponderende penetratiediepten  $\lambda_i = \lambda \sqrt{m_i}$  ( $i=a,b,c$ ).  $\lambda_i$  is dus de karakteristieke lengte waarover de afschermstroom  $j_i$  loopt en niet de afscherm lengte van  $B_i$ .

In het geval van voldoende zwak gekoppelde korrels geldt dat het aangelegde veld dieper in het intergranulaire materiaal binnendringt dan in de korrels zelf (dus  $\lambda_J \gg \lambda_g$ ). Daarnaast veronderstellen we uit continuïteitsoverwegingen dat  $\lambda_J \gg a_0$ . Als  $\lambda_g > R_g$  (=straal van de korrels) dan wordt  $\lambda_J$  goed benaderd door [GIO 78] :

$$\lambda_J = \left[ \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0 a_0 j_0} \right]^{\frac{1}{2}}. \tag{2.13}$$

Indien echter  $\lambda_g < R_g$ , dan hangt de exacte uitdrukking voor  $\lambda_J$  af van de vorm van de korrels en hoe de intergranulaire veldverdeling er rond zo'n korrel precies uitziet. Een algemene vergelijking voor  $\lambda_J$  is dan :

$$\lambda_J = \left[ \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0 a_0 j_0 \mu_{\text{eff}}} \right]^{\frac{1}{2}}. \tag{2.14}$$

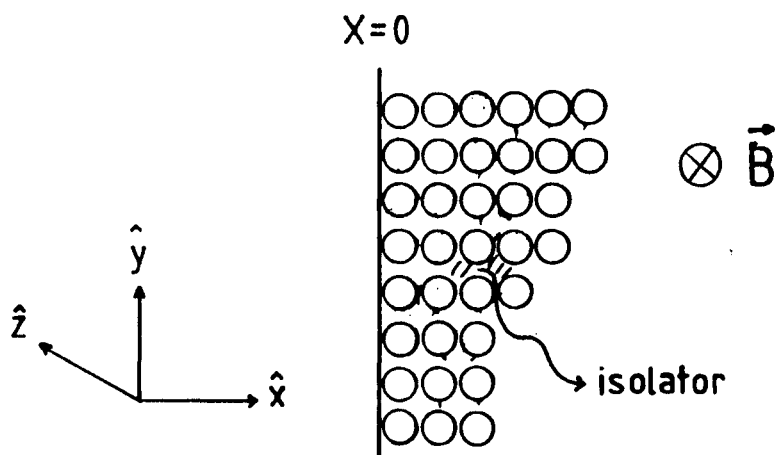
Hierin is  $\mu_{\text{eff}}$  gedefinieerd als de verhouding van de magnetische fluxdichtheid  $B$ , het

gemiddelde van de lokale fluxdichtheid  $b$  over het oppervlak  $a_0^2$  van een korrel, en het veld  $H$  :

$$\vec{B} = \mu_{\text{eff}} \vec{H} . \tag{2.15}$$

Vgl 2.14 krijgt nu een groter geldigheidsgebied dan je in eerste instantie misschien zou vermoeden. Verschillende modellen voor de vorm en geometrie van de korrels en de korrelgrenzen hebben alleen invloed op de uitdrukking voor  $\mu_{\text{eff}}(T)$ . Stellen we ons bv voor het gemak de granulaire structuur van de bulk supergeleider voor als geschetst in figuur 2.10. De korrels zijn nu supergeleidende cilindres met straal  $R_g$ , die liggen op een half-oneindig rooster met roosterparameter  $a_0$  langs de  $x$ - en  $y$ -as, zodat demagnetisatieëffekten vermeden worden. Het intergranulaire materiaal beschouwen we niet-magnetisch. Het intergranulaire veld  $H < H_{c1J}$  zal nu ongeveer afvallen als  $H_a \exp(-x/\lambda_J)$ , indien  $H_a$  het aangelegde magnetische veld is. Voor  $\lambda_J$  moeten we dan vgl 2.14 invullen, terwijl voor deze specifieke situatie de temperatuurafhankelijke permeabiliteit van de granulaire supergeleider gegeven wordt door :

$$\mu_{\text{eff}}(T) = f_n + f_s \{1 - P_{\text{cyl}}(R_g/\lambda_g)\} . \tag{2.16}$$



**fig. 2.10 :** *Half-oneindig rooster van supergeleidende korrels. Het intergranulair materiaal is niet-magnetisch.*

De temperatuurafhankelijkheid komt voort uit die van  $\lambda_g$ ,  $f_n$  en  $f_s$  stellen respectievelijk de volumefracties normaal (intergranulair) en supergeleidend (intragranulair) materiaal voor. De afwijking van volledige velduitstoting door de supergeleidende cilindres dmv het Meissnereffekt als gevolg van veldpenetratie wordt weergegeven door  $P_{cyl}$ . In [CLE 87] en [LOB 83] leidt men voor  $P_{cyl}$  af :

$$P_{cyl}(x) = 1 - 2 \frac{I_1(x)}{x I_0(x)}, \quad (2.17)$$

met  $I_n(x)$  de gemodificeerde Besselfuncties. In de limietsituatie  $\lambda_g \ll R_g$  vinden we  $\mu_{eff} \approx f_n$ . Een eerste orde correctie in machten van  $\lambda_g/R_g$  geeft  $\mu_{eff} \approx f_n + 2 f_s \lambda_g/R_g$ . In het andere uiterste geval  $\lambda_g \gg R_g$  vinden we  $\mu_{eff} \approx 1$ , omdat nu de cilindrische korrels bijna geheel gevuld zijn met flux. Een laagste orde correctie in machten van  $R_g/\lambda_g$  geeft hier  $\mu_{eff} \approx 1 - (f_s/8) (R_g/\lambda_g)^2$ .

Wat gebeurt er nu als  $H_a > H_{c1J}$ ? Energetisch wordt het voordelig als er zich intergranulaire vortices vormen. We kunnen ons deze voorstellen als 'gewone' vortices, zoals die zich ook in de mixed-state van een type-II supergeleider bevinden (zie §2.1). De flux in zo'n Josephson vortex is gequantiseerd en bedraagt  $\Phi_0$ . De kern strekt zich uit over intergranulaire gebieden en niet over de cilindrische korrels. Aan de hand van een energiebeschuwing, waarin  $\epsilon_{1J} = \Phi_0 H_{c1J}$  de energie is die het kost om een geïsoleerde vortex te produceren, kan worden afgeleid voor  $H_{c1J}$  (zie bv [TIN 75c] en [GEN 66]) :

$$H_{c1J} = \frac{\Phi_0}{\mu_0 \lambda_J^2} \ln \left[ \frac{\lambda_J}{a_0/2} \right]. \quad (2.18)$$

Naar analogie met de berekening van  $H_{c1}$  bij type-II supergeleiders is er gebruik gemaakt van de limietsituatie  $\lambda_g \gg \xi_J$  (hoge- $\kappa$  limiet). In dat geval is de kern van de vortex (het gebied waarover de ordeparameter van nul toeneemt tot een) klein en kan de energiebijdrage van de kern verwaarloosd worden tov de veldenergie en de kinetische energie van de superstromen die door de juncties lopen. Als  $\epsilon \gg 1$ , zodat  $\xi_J \gg a_0$ , dan heeft de intergranulaire vortex een kern waarin de ordeparameter onderdrukt wordt en verschijnt in (2.9a)  $\xi_J$  als de afkaplengte voor de bijdrage van de kinetische energie van de superstromen (analoog aan type-II supergeleider). Is echter  $\epsilon \ll 1$ , zodat  $\xi_J \ll a_0$ , dan bezit de vortex geen kern met onderdrukte



ordeparameter. Vgl 2.18 is dan geldig, waarin  $a_0/2$  de afkaplengte is van de integraal, die de som over de kinetische energieën van de superstromen in de juncties benadert.

De mate van pinning van de vortices bepaalt nu hoever de intergranulaire vortices in het materiaal binnendringen. Uitgaande van een planaire geometrie verwachten we dat de ruimtelijke afhankelijkheid van de magnetische flux in de supergeleider voldoet aan de critical-state vergelijking (zie §2.2) :

$$\frac{dB}{dr} = \mu_0 j_{cJ} \cdot \tag{2.19}$$

Hierin is  $j_{cJ}(B,T)$  de intergranulaire (transport) kritische stroomdichtheid. Deze heeft als maximale waarde  $j_0$ , de maximale Josephson stroomdichtheid, maar het is goed mogelijk dat de intergranulaire vortices voor  $j_{cJ} < j_0$  reeds ontpind raken. Vergelijk hiertoe de situatie in een 'gewone' type-II supergeleider. De maximale stroom die de vortices nog net niet in beweging zet, is daar  $j_c$  met een maximale waarde  $j_0$ , de zgn depairing stroom, waarvoor de Cooperparen opgebroken worden en de supergeleidende eigenschappen verloren gaan.

Bij toenemend veld zal  $j_{cJ}$  om twee redenen afnemen. Aan de ene kant wordt door onderlinge afstoting van de vortices de pinningkracht verlaagd. Dit wil zeggen dat een vortex niet optimaal kan profiteren van de pinningpotentiaal [CAM 72]. Aan de andere kant wordt  $j_0$  zelf nog onderdrukt door de relatie (zie bv [TIN 75]) :

$$j_0(H) = j_0(0) \frac{|\sin(\pi\Phi/\Phi_0)|}{(\pi\Phi/\Phi_0)}, \tag{2.20}$$

met  $\Phi = HA_J$  en  $A_J$  het gebied van een junctie waarin veld binnendringt. In het geval dat  $j_{cJ}$  klein is, zal het intergranulaire veld bijna uniform over het preparaat verdeeld zijn. Met toenemende temperatuur verwachten we dat  $j_{cJ}$  afneemt, hoofdzakelijk omdat  $j_0$  afneemt. Bovendien zal het in de buurt van  $T_{cJ}$  en daarboven niet meer mogelijk zijn de intergranulaire vortices gepind te houden, want  $k_B T$  is groot genoeg om de vortices van het ene pinningcentrum over de energiebarrière naar het aangrenzende pinningcentrum te exciteren. Als gevolg hiervan verdwijnt  $j_{cJ}$  voor temperaturen nabij en groter dan  $T_{cJ}$  :  $j_{cJ}=0, T \geq T_{cJ}$ . Voor  $T \leq T_{cJ}$  treedt er fluxkruip op als het elektrisch veld de thermisch geactiveerde vorm  $E \sim \exp(j/j_{th})$  heeft, met  $j_{th} \sim k_B T$  [CAM 72], [AND 62].

De magnetisatie van een granulaire supergeleider wordt uitvoerig beschreven en behandeld in het werk van vd Pol [POL 89]. Metingen van de complexe susceptibiliteit  $\chi = \chi' + i\chi''$  in een harmonisch in de tijd variërend aangelegd veld  $H_a = H_0 + h_0 \cos \omega t$  geven belangrijke informatie over  $j_{cJ}$  en  $j_{cg}$ , de kritische stroomdichtheid van de supergeleidende korrels. Verschillende experimenten hebben reeds aangetoond dat  $\chi''$  als functie van de temperatuur T twee pieken kan vertonen. Een piek nabij  $T_c$  wordt nu geassocieerd met  $j_{cg}$  en de andere piek, veelal bij lagere temperatuur, met  $j_{cJ}$ . Hierbij spelen twee dimensieloze parameters een belangrijke rol [CLE 79]:

$$x_g = \frac{h_0}{j_{cg} R_g} \tag{2.21a}$$

$$x_J = \frac{h_0}{j_{cJ} R}, \tag{2.21b}$$

waarin  $h_0$  het modulatieveld is,  $R_g$  de straal van de cilindrische korrels en R de straal van het preparaat. Vgl 2.21 is eigenlijk de critical-state vergelijking waarin fluxkruip verwaarloosd is. Nabij  $T_c$ , als  $x_J > 1$  en  $x_g \approx 1$ , is het intergranulaire veld zo goed als uniform. De hystereseverliezen worden dan veroorzaakt door beweging van intragranulaire vortices. In dit geval vertoont  $\chi''$  een maximum bij  $x_g = 1$  (zie §2.4), zodat  $\mu''_{max} = 0.212 f_s$  ( $\mu = 1 + \chi$ ) als  $\lambda_g \ll R_g$  en  $H_0 \gg H_{c1g}$ . De hoogte van de piek wordt echter sterk onderdrukt als  $\lambda_g > R_g$ , hetgeen gebeurt als  $H_0$  klein is. Bij lage temperaturen neemt  $j_{cg}$  toe en wordt  $x_g$  erg klein (2.21a). Verliezen als gevolg van veldpenetratie in de korrels is dan verwaarloosbaar en een lage-temperatuurpiek in  $\chi''$  vindt plaats als  $x_J = 1$ , met  $\mu''_{max} = 0.212 f_n$ . Uit de positie van dit maximum kan  $j_{cJ}$  bepaald worden. De verhouding van de hoogten van beide pieken geeft dus in het geval  $H_0 \gg H_{c1g}$  en  $\lambda_g \ll R_g$  de verhouding van de volumefracties van intra- en intergranulair materiaal:

$$\frac{\chi''_{max,J}}{\chi''_{max,g}} = \frac{f_n}{f_s}. \tag{2.22}$$

Metingen van de dynamische susceptibiliteit bij verschillende  $H_0$  en  $h_0$  kunnen dus gebruikt worden om de functionele verbanden  $j_{cg}(H_0, T)$  en  $j_{cJ}(H_0, T)$  te bepalen.

## §2.4 : AC-verliezen in type-II supergeleiders

### 2.4.1 Inleiding

Alvorens over te gaan op een beschouwing van een ideale type-II supergeleider, zullen we eerst wat stilstaan bij het ontstaan van AC-verliezen. Als een normaal- of supergeleidend metaal onderworpen wordt aan een in de tijd variërende magnetische inductie  $\vec{B}_a(t)$ , die in het metaal een netto inductie  $\vec{B}$  veroorzaakt, dan ontstaat er volgens de wet van Faraday een elektrisch veld. Dit elektrisch veld  $\vec{E}$  zorgt samen met de macroscopische stroomdichtheid  $\vec{j}$  voor de lokale energiedissipatie per volumeëenheid  $\vec{j} \cdot \vec{E}$ . Is de tijdafhankelijkheid harmonisch met frequentie  $\omega$ , dan geeft het tijdgemiddelde van  $\vec{j} \cdot \vec{E}$ , geïntegreerd over het volume  $V$  van het preparaat, het tijdgemiddeld gedissipeerd vermogen  $P$ . In dit verband kan het theorema van Poynting [JAC 62] van nut zijn. Er geldt

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{S} = - \vec{j} \cdot \vec{E} , \quad (2.23)$$

waarin  $u$  de energiedichtheid is en  $\vec{S}$  Poynting's vector :

$$\vec{S} = \vec{E} \times \vec{H} . \quad (2.24)$$

Als we nu vgl. 2.23 over het volume  $V$  integreren en gebruik maken van het divergentie theorema, dan vinden we :

$$\int_A d^2r \vec{S} \cdot \vec{n}_{in} = \int_V d^3r \vec{j} \cdot \vec{E} + \int_V d^3r \frac{\partial u}{\partial t} . \quad (2.25)$$

$A$  is het oppervlak van het preparaat met een naar binnen gerichte normaalvector  $\vec{n}_{in}$ . De linkerkant van vgl. 2.25 stelt nu de arbeid per tijdseenheid voor, verricht door de velden op het preparaat. De eerste term aan de rechterkant is de hoeveelheid gedissipeerd vermogen en de tweede term de verandering van de interne energie. Een middeling over een periode  $T$  levert vervolgens :

$$P = \frac{1}{T} \int_0^T dt \int_V d^3r \vec{j} \cdot \vec{E}$$

$$= \frac{1}{T} \int_0^T dt \int_A d^2r \vec{S} \cdot \vec{n}_{in} . \quad (2.26)$$

Soms is het handig de volgende begrippen te introduceren. Wanneer  $\vec{j} \cdot \vec{E}$  uniform over het volume verdeeld is, kunnen we  $P_V = P/V$ , de tijdgemiddeld gedissipeerde energie per volumeëenheid, definiëren. In het geval  $\vec{j} \cdot \vec{E}$  aan het oppervlak gelokaliseerd is, maken we gebruik van  $P_A = P/A$ . Zo zijn  $W_V = W/V = P_V T$  en  $W_A = W/A = P_A T$  afgeleid van  $W = PT$ , het energieverlies per periode  $T$ .

Om demagnetisatieëffecten te kunnen verwaarlozen, beschouwen we nu een lange cylinder met een aangelegde magnetische inductie  $\vec{B}_a$  parallel aan de cylinder-as.

$\bar{B}(t)$  is de gemiddelde inductie over het volume  $V$  van de cylinder. Poynting's theorema zegt dan dat  $P_V = W_V/T$  met  $W_V = A_H/\mu_0 \cdot A_H$  is de oppervlakte van de hystereselus. Er is dus sprake van grote AC-verliezen als a) een grote hoeveelheid flux per periode in en uit de cylinder stroomt, en b)  $\bar{B}$  aanzienlijk uit evenwicht is met  $B_a$  gedurende zo'n periode.

Grofweg zijn nu drie verschillende situaties mogelijk. Zijn de afschermstromen klein, dan stroomt er weliswaar een grote hoeveelheid flux in en uit de cylinder, maar  $\bar{B}$  blijft dicht bij het evenwicht met  $B_a$  gedurende zo'n periode, zodat het oppervlak  $A_H$  en de verliezen klein blijven. In het geval van 'matige'

afschermstromen gaat een redelijke hoeveelheid flux in en uit de cylinder, blijft  $\bar{B}$  vrij ver van evenwicht met  $B_a$ , is de oppervlakte  $A_H$  relatief groot en derhalve de verliezen ook. Bij grote afschermstromen is  $\bar{B}$  steeds ver uit evenwicht met  $B_a$  gedurende een periode, maar omdat de hoeveelheid in- en uitstromende flux klein is, zijn  $A_H$  en de verliezen klein.

Een andere belangrijke grootte, reeds in de vorige paragraaf aan bod gekomen, is de complexe permeabiliteit  $\mu$  (of susceptibiliteit  $\chi = \mu - 1$ ). Als de aangelegde magnetische inductie bestaat uit een statisch gedeelte en een sinusvormige tijdafhankelijke bijdrage  $B_a = B_0 + b_0 \cos \omega t$ , dan wordt de inductiespanning in een spoel die rondom het cilindrische preparaat (straal  $R$ ) is gewikkeld, gegeven door :

$$V = - \frac{d\Phi}{dt} . \quad (2.27)$$

Hierin is  $\Phi$  de gemiddelde hoeveelheid flux in de spoel. In deze situatie is de hoeveelheid flux gerelateerd aan de gemiddelde magnetische inductie in het preparaat volgens  $\Phi = \pi R^2 \bar{B}$ . De gemiddelde magnetische inductie in het preparaat kan geschreven worden als de som van de in de tijd gemiddelde waarde  $\langle \bar{B} \rangle_t$  en de afwijking hiervan :

$$\bar{B} = \langle \bar{B} \rangle_t + \bar{b} . \tag{2.28}$$

Omdat  $\bar{b}$  periodiek is met periode T, kan  $\bar{b}$  geschreven worden in een Fourierreeks :

$$\bar{b} = \sum_{n=1}^{\infty} b_n (\mu'_n \cos n\omega t + \mu''_n \sin n\omega t) , \tag{2.29}$$

met

$$\mu'_n = \frac{\omega}{\pi b_0} \int_0^T dt \bar{b} \cos n\omega t \tag{2.30a}$$

$$\mu''_n = \frac{\omega}{\pi b_0} \int_0^T dt \bar{b} \sin n\omega t . \tag{2.30b}$$

De gemeten spanning over de spoel wordt dan

$$V = - \pi R^2 \frac{d\bar{b}}{dt} , \tag{2.31}$$

wat gecombineerd met vgl. 2.29 resulteert in :

$$V = V_0 \sum_{n=1}^{\infty} n (\mu'_n \sin n\omega t - \mu''_n \cos n\omega t) . \tag{2.32}$$

Hierin is  $V_0$  de amplitude van de sinusvormige inductiespanning voor het geval dat de spoel leeg is en wordt gegeven door  $V_0 = \pi R^2 b_0 \omega$ . Het is nu mogelijk om m.b.v. lock-in technieken alleen de spanningscomponent die hoort bij  $n=1$  ( $V_1$ ) te meten.

Deze bezit een frequentie  $\omega$  :

$$V_1 = V_0 (\mu'_1 \sin \omega t - \mu''_1 \cos \omega t) . \quad (2.33)$$

We definiëren vervolgens een complexe permeabiliteit  $\tilde{\mu}$ , gegeven door :

$$\tilde{\mu} = \mu' + i\mu'' = \mu'_1 + i\mu''_1 . \quad (2.34)$$

Het reële gedeelte van  $\tilde{\mu}$  wordt de in-fase (met  $B_a$ ) of inductieve component genoemd en het imaginaire gedeelte de uit-fase of verliescomponent. In de complexe schrijfwijze is het bovenstaande als volgt samen te vatten :

$$B_a = B_0 + \operatorname{Re} \left\{ b_0 e^{-i\omega t} \right\} \quad (2.35)$$

$$V_1 = V_0 + \operatorname{Re} \left\{ i \tilde{\mu} e^{-i\omega t} \right\} . \quad (2.36)$$

In het geval van een normaal metaal met een statische magnetische permeabiliteit  $\mu$  geldt dat voor lage frequenties  $\mu' \approx \mu$  en  $\mu'' \approx 0$ , zodat  $V_1 \approx \mu V_0 \sin \omega t$ . Bij een supergeleider in de volledige Meissnertoestand geldt echter  $\mu' \approx 0$  en  $\mu'' \approx 0$ , zodat  $V_1 \approx 0$ .

Er bestaat nu een direct verband tussen  $\mu''$  en de oppervlakte  $A_H$  van de hystereselus :

$$A_H = \oint B_a d\bar{B} = \int_0^T (B_0 + b_0 \cos \omega t) \frac{d\bar{B}}{dt} dt . \quad (2.37)$$

Gebruik makend van vgl. 2.28 en 2.29 komen we na enig rekenwerk (slechts de  $n=1$ ,  $\cos^2 \omega t$ -term blijft over) tot :

$$A_H = \pi b_0^2 \mu'' . \quad (2.38)$$

Vgl. 2.38 vertelt ons dus dat  $\mu''$  eenvoudig de verhouding van de oppervlakte van de hystereselus en die van een cirkel met straal  $b_0$  is. Het energieverlies per eenheid van volume per periode wordt dan in termen van  $\mu''$  :

$$W_V = \frac{\pi b_0^2 \mu''}{\mu_0} . \tag{2.39}$$

### 2.4.2 Flux-flow verliezen

Beschouwen we nu het gedrag van een ideale type-II supergeleider. We vergeten voorlopig de mogelijkheid van fluxpinning, zodat de AC-verliezen flux-flow- of visceuze verliezen genoemd kunnen worden. Het gedrag van een ideale type-II supergeleider vertoont veel overeenkomsten met dat van een normaal metaal. Daarin leidt combinatie van de Maxwellrelaties en de lineaire verbanden  $\vec{E} = \rho_n \vec{j}$  en  $\vec{B} = \mu \vec{H}$  tot een diffusievergelijking voor  $\vec{B}$  :

$$\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = D_n \nabla^2 \vec{B} , \tag{2.40}$$

met  $D_n = \rho_n / \mu \mu_0$ . Voor een type-II supergeleider echter zijn de lineaire verbanden tussen  $\vec{E}$  en  $\vec{j}$  en tussen  $\vec{B}$  en  $\vec{H}$ , die van toepassing zijn bij een normaal, isotroop metaal, niet langer geldig. In plaats daarvan vinden we als  $\vec{E}$  en  $\vec{j}$  parallel zijn :

$$\vec{E} = \rho_f(B) \vec{j} , \tag{2.41}$$

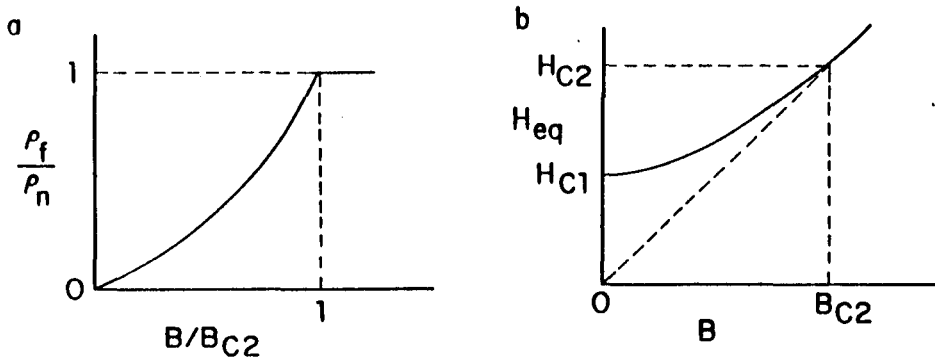
met  $\rho_f$  de flux-flow soortelijke weerstand, en :

$$\hat{H} = H_{eq}(B) \hat{B} , \tag{2.42a}$$

of

$$\hat{B} = B_{eq}(H) \hat{H} , \tag{2.42b}$$

waar  $\hat{B}$  en  $\hat{H}$  de eenheidsvectoren in de richting van  $\vec{B}$  en  $\vec{H}$  zijn. In figuur 2.11 is de B-afhankelijkheid van  $\rho_f$  en  $H_{eq}$  geschetst. De soortelijke weerstand in de normale toestand is aangeduid met  $\rho_n$ . Omdat er geen analytische uitdrukkingen voor  $\rho_f(B)$  en  $H_{eq}(B)$  op te schrijven zijn, worden de elektrodynamische vergelijkingen niet-lineair, zodat analytische oplossingen niet langer mogelijk zijn voor onbeperkt grote amplitudes van het aangelegd magnetisch veld. We kunnen echter een linearisatie toepassen toepassen voor kleine amplitudes  $b_0$  en zo de



**fig. 2.11 :** *Magnetische fluxdichtheid-afhankelijkheden van type-II supergeleiders : (a) flux-flow soortelijke weerstand  $\rho_f/\rho_n$  tegen  $B/B_{c2}$  en (b)  $H_{eq}$  tegen  $B$ .*

elektrodynamische respons van een type-II supergeleider analytisch behandelen [CLE 76].

Laat het aangelegd magnetisch veld en de flux de volgende gedaante hebben :

$$H_a = H_0 + h_0 \cos \omega t \tag{2.43a}$$

$$B_a = B_0 + b_0 \cos \omega t , \tag{2.43b}$$

met  $h_0 \ll H_0$  en  $b_0 \ll B_0$ . In de cilindrische supergeleider geldt dan een macroscopische fluxdichtheid die voldoet aan :

$$B(r,t) = B_{eq}(H_0) + b_1(r,t) , \tag{2.44}$$

als  $r$  de radiële plaatscoördinaat is. Het ruimtelijk gemiddelde over een cross-sectie wordt dan :

$$\bar{B}(t) = B_{eq}(H_0) + \bar{b}_1(t) , \tag{2.45}$$

met  $|b_1| \ll B_{eq}(H_0)$  en  $|\bar{b}_1| \ll B_{eq}(H_0)$ . In dit geval voldoet  $\bar{b}_1(t)$  aan dezelfde vergelijkingen als in de normale toestand (zie vgl. 2.40), behalve dat de soortelijke weerstand  $\rho_n$  en de permeabiliteit  $\mu$  in de normale toestand vervangen dienen te worden door resp.  $\rho_{f0}$ , de flux-flow soortelijke weerstand, en de differentiële



permeabiliteit van de mixed-state  $\mu'_0$ . Er gelden de volgende definities :

$$\rho_{f0} = [\rho_f(B)]_{B=B_{eq}(H_0)} \quad (2.46)$$

en

$$\mu'_0 = \frac{1}{\mu_0} \left[ \frac{dB_{eq}(H)}{dH} \right]_{H=H_0} \quad (2.47)$$

In figuur 2.12 zijn deze grootheden weergegeven. Ook nu kan de gemiddelde magnetische inductie in het preparaat geschreven worden als de som van een statisch gedeelte, dat afkomstig is van de evenwichtsinductie behorende bij het aangelegde statische magneetveld, en een tijdafhankelijke bijdrage, die het gevolg is van het aangelegde wisselveld(je). Vgl. 2.45 wordt dan in termen van bovengenoemde flux-flow grootheden :

$$\bar{B}(t) = B_{eq}(H_0) + \bar{b}_1(t) , \quad (2.48a)$$

met

$$\bar{b}_1(t) = \text{Re} \left[ \bar{b}_{1\omega} e^{-i\omega t} \right] \quad (2.48b)$$

en

$$\bar{b}_{1\omega} = \tilde{\mu} b_0 . \quad (2.48c)$$

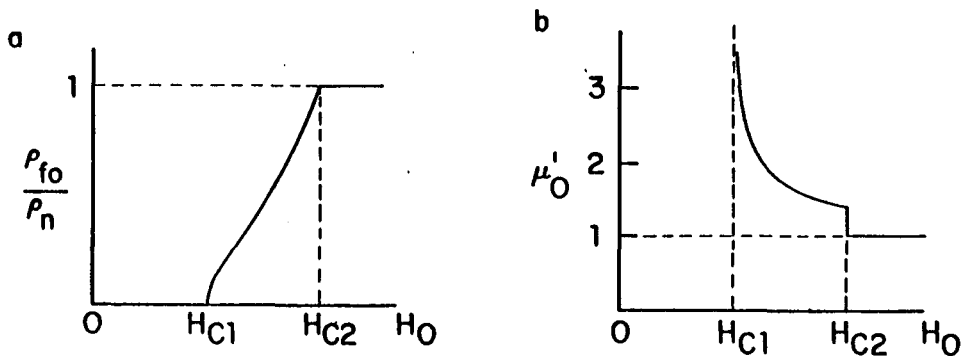


fig. 2.12.: Weergave van (a)  $\rho_f/\rho_n$  (vgl. 2.46) en (b)  $\mu'_0$  (vgl. 2.47) als functie van  $H_0$  voor een type-II supergeleider.

Hierin is  $\tilde{\mu}$  de al eerder gedefinieerde complexe permeabiliteit (zie vgl. 2.34), waarvoor nu geldt :

$$\tilde{\mu} = \mu' + i\mu'' = \mu'_0 \frac{2J_1(kR)}{J_0(kR)} \quad (2.49)$$

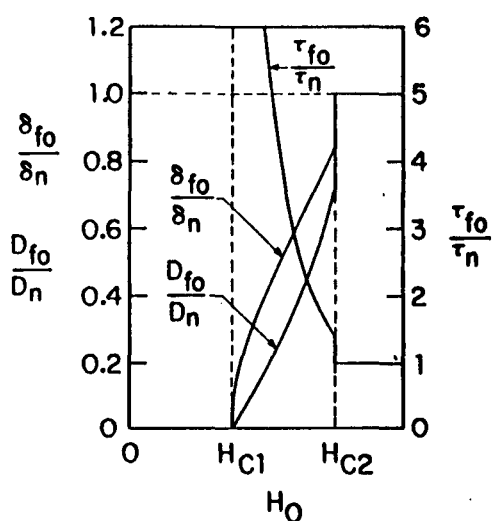
$J_n$  is de  $n^e$  orde Besselfunctie en  $k = (1+i)/\delta_{f0}$ , met  $\delta_{f0}$  de flux-flow indringdiepte. In [CLE 79] worden uitdrukkingen gegeven voor  $\delta_{f0}$ , de flux-flow diffusietijd  $\tau_{f0}$  en de magnetische diffusiecoëfficiënt  $D_{f0}$  (zie ook vgl. 2.40) :

$$\delta_{f0} = \left[ \frac{2D_{f0}}{\omega} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (2.50)$$

$$\tau_{f0} = \frac{R^2}{2D_{f0}}, \quad (2.51)$$

$$D_{f0} = \frac{\rho_{f0}}{\mu'_0 \mu_0}. \quad (2.52)$$

In figuur 2.13 is het verloop van deze flux-flow grootheden, genormaliseerd op hun



**fig. 2.13 :** Weergave van  $D_{f0}/D_n$  en  $\delta_{f0}/\delta_n$  (linkerschaal) en  $\tau_{f0}/\tau_n$  (rechterschaal) als functie van  $H_0$  voor een type-II supergeleider.

waarden in de normale toestand net boven  $H_{c2}$ , te zien als functie van  $H_0$ . Met behulp van deze flux-flow grootheden kunnen  $\mu'$  en  $\mu''$  ook geschreven worden als :

$$\mu'/\mu'_0 = f_1(x) = f_0(x) \cos \beta(x) \quad (2.53a)$$

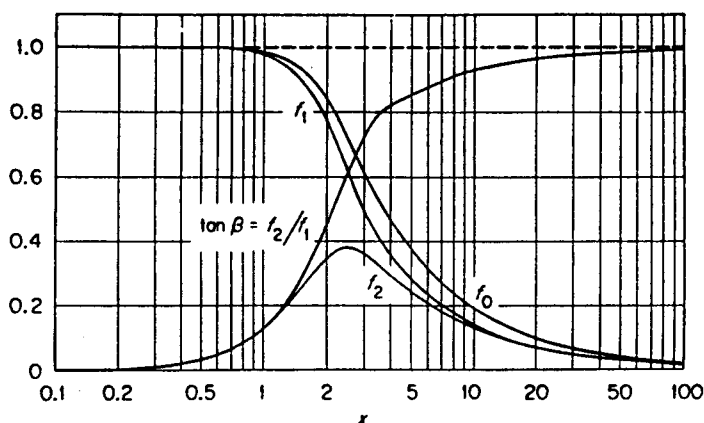
$$\mu''/\mu'_0 = f_2(x) = f_0(x) \sin \beta(x) . \quad (2.53b)$$

De functies  $f_0(x)$  en  $\beta(x)$  worden, in termen van de modulus  $M_\nu$  en de fase  $\Theta_\nu$  van de Kelvinfuncties [ABR 67], gegeven door :

$$f_0(x) = \frac{2 M_1(x)}{x M_0(x)} \quad (2.54a)$$

$$\beta(x) = \Theta_0(x) - \Theta_1(x) + \frac{3}{4} \pi , \quad (2.54b)$$

met  $x = R\sqrt{2}/\delta_{f0} = (2\omega\tau_{f0})^{\frac{1}{2}}$ . Het argument  $x$  hangt nu niet alleen sterk af van de frequentie  $\omega$ , maar ook van het aangelegd DC-veld  $H_0$ . In figuur 2.14 zijn de functies  $f_0, f_1, f_2$  en  $\tan \beta$  als functie van  $x$  geschetst. De hystereselus kan nu eenvoudig als volgt worden geanalyseerd. De AC-component van de aangelegde magnetische fluxdichtheid is  $b_a = b_0 \cos \omega t$ , terwijl de geïnduceerde AC-component



**fig. 2.14 :** De hulpfuncties  $f_0, f_1, f_2$  en  $\tan \beta$  zoals gebruikt bij de beschrijving van de complexe permeabiliteit in een type-II supergeleider (vgl. 2.53 en 2.54) tegen  $x = R\sqrt{2}/\delta_{f0} = (2\omega\tau_{f0})^{\frac{1}{2}}$ .

van de gemiddelde fluxdichtheid in de cylinder  $\bar{b}_1 = \mu'_0 b_0 f_0 \cos(\omega t - \beta)$  is. De hystereselus is dus een ellips met oppervlakte  $A_H$  :

$$A_H = \pi b_0^2 \mu'_0 f_0 \sin \beta . \quad (2.55)$$

Bestudering van figuur 2.15 maakt duidelijk dat de helling van de lijn MN gelijk is aan  $\mu'$  :

$$\mu' = \mu'_0 f_1 = \mu'_0 f_0 \cos \beta , \quad (2.56)$$

en dat

$$\mu'' = \frac{A_H}{\pi b_0^2} = \mu'_0 f_2 = \mu'_0 f_0 \sin \beta . \quad (2.57)$$

M.b.v. vgl. 2.39 vinden we voor het energieverlies per volumeëenheid per periode

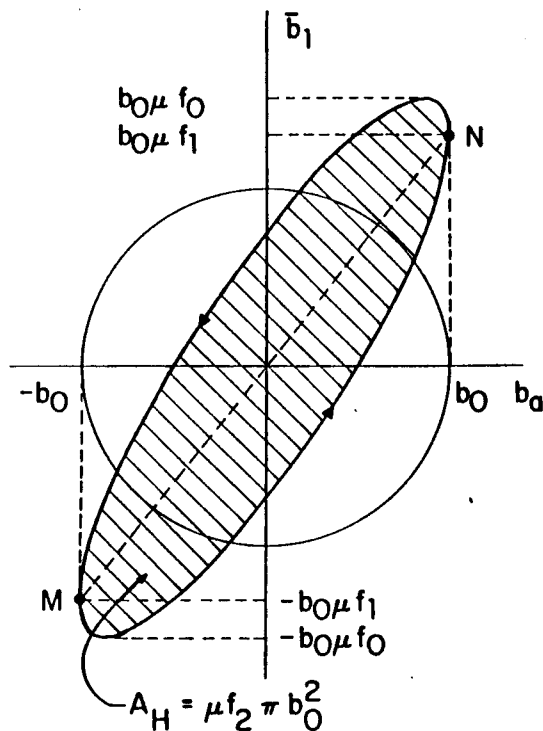


fig. 2.15 : Hystereselus van een cilindrische type-II supergeleider.

voor een type-II supergeleider :

$$W_V = \frac{\pi b_0^2}{\mu_0} \mu_0' f_2 \left[ \frac{R\sqrt{2}}{\rho f_0} \right]. \quad (2.58)$$

Kiezen we nu voor  $b_0$  en  $\omega$  bepaalde waarden en laten we  $H_0$  variëren, dan wordt  $W_V$  maximaal als  $\mu'' = \mu_0' f_2$  maximaal is. Zowel  $\mu_0'$  als  $f_2$  (via  $\delta_{f0}$ ) zijn afhankelijk van  $H_0$ .

Bij lage frequenties, zodat  $\omega\tau_{f0} \ll 1$ ,  $R \ll \delta_{f0}$  en  $x \ll 1$ , vindt men  $f_0 \approx f_1 \approx 1$  en  $f_2 \approx \beta \approx \frac{1}{8}x^2 \ll 1$ . Dit is het geval bij kleine afschermstromen. Een grote hoeveelheid flux stroomt in en uit de supergeleider, maar  $\bar{B}$  blijft dicht bij zijn evenwichtswaarde, zodat de verliezen klein zijn. Bij gemiddelde frequenties  $\omega\tau_{f0} \approx 1$ ,  $R \approx \delta_{f0}$  en  $x \approx 1$  zijn  $f_0$ ,  $f_1$  en  $f_2$  allen ongeveer 1. Hiervan is sprake bij 'gemiddelde' afschermstromen. Er gaat een tamelijk grote hoeveelheid flux in en uit de supergeleider,  $\bar{B}$  is relatief ver uit evenwicht met  $B_a$  en de verliezen zijn groot. Bij hoge frequenties ( $\omega\tau_{f0} \gg 1$ ,  $R \gg \delta_{f0}$  en  $x \gg 1$ ) zijn daarentegen de verliezen weer klein, omdat  $\bar{B}$  weliswaar ver uit evenwicht met  $B_a$  blijft gedurende een periode, maar de grote afschermstromen ervoor zorgen dat slechts weinig flux de supergeleider in- en uitstroomt.

Experimenten [CLE 76] hebben aangetoond dat in bijna ideale type-II supergeleiders de bovenstaande methode inderdaad te gebruiken is om de componenten  $\mu'$  en  $\mu''$  van de complexe permeabiliteit te berekenen. In type-II supergeleiders waarin irreversibele magnetisatie als gevolg van flux-pinning een belangrijke rol speelt, moet echter een andere aanpak gehanteerd worden. Dit kan ook gelden voor H-T supergeleiders, omdat flux-pinning daar een rol kan spelen.

### 2.4.3 Flux-pinning verliezen

Zoals reeds is opgemerkt, hangt  $W_V$  voor een ideale type-II supergeleider zonder flux-pinning sterk af van de frequentie  $\omega$  van het aangelegde wisselveld. We zullen nu proberen te laten zien dat in het geval van de aanwezigheid van pinning, magnetische hysteresis belangrijk wordt en dat als hystereseverliezen dominant zijn,  $W_V$  onafhankelijk wordt van de frequentie. Voor  $j > j_c$ , de kritische stroomdichtheid, geldt  $E = \rho_f (j - j_c)$  [KIM 76], zodat de energiedissipatie per

eenheid van volume  $\vec{j} \cdot \vec{E}$  geschreven kan worden als :

$$\vec{j} \cdot \vec{E} = \frac{|\vec{E}|^2}{\rho_f} + \vec{j}_c \cdot \vec{E}, \quad (2.59)$$

met  $\rho_f$  de flux-flow soortelijke weerstand. De term  $|\vec{E}|^2/\rho_f$  correspondeert met de flux-flow verliezen die hierboven in §2.4.2 aan de orde zijn gekomen. De term  $\vec{j}_c \cdot \vec{E}$  beschrijft nu de hystereseverliezen, die tot uiting komen in warmteproductie bij de pinningcentra, die het bewegen van vortices tegengaan. Hystereseverliezen (of : pinningverliezen) zijn dus dominant als  $|\vec{E}|^2 \ll \rho_f j_c$ , d.w.z. als het elektrisch veld dat door de beweging van vortices wordt opgewekt relatief klein is. Dit houdt in dat  $j$  niet veel groter dan de kritische stroomdichtheid mag worden.

Het is duidelijk dat bij de behandeling van pinningverliezen  $j_c$  een belangrijke rol speelt. Meestal is  $j_c(B)$  een monotoon dalende functie van  $B$ , die nul wordt bij  $B_{c2}$ . In [CAM 72] wordt hier in detail op ingegaan. De basisvergelijkingen die nu opgelost moeten worden, zijn :

$$\vec{E} = \rho_f (\vec{j} - \vec{j}_c), \quad (2.60)$$

$$\vec{E} = \vec{B} \times \vec{v}, \quad (2.61)$$

met  $\vec{v}$  de lokale vortexsnelheid,

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \quad (2.62)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 \text{ (in de supergeleider)}, \quad (2.63)$$

$$\vec{H} = H_{eq}(B) \hat{B}, \quad \vec{B} = B_{eq}(H) \hat{H}, \quad (2.64)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.65)$$

en

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{j}. \quad (2.66)$$

In deze vergelijkingen wordt  $\vec{j}$  parallel aan  $\vec{B}$  verondersteld en geldt dat  $\hat{B} = B \hat{B}$  en  $\hat{H} = H \hat{H}$ . Voor lage frequenties, zodat  $E \ll \rho_f j_c$  en  $j \approx j_c$ , kunnen we vgl. 2.66 vervangen door de critical-state vergelijking :

$$|\vec{\nabla} \times \vec{H}| = j_c \quad (2.67)$$

Aan vgl. 2.60–2.67 dient tegelijk voldaan te worden, tesamen met de randvoorwaarden. Als de type-II supergeleider een lange cylinder is met straal  $R$  en het aangelegde veld  $\vec{H}_a$  parallel aan de as van de cylinder is, dan zijn de randvoorwaarden dat de normale component van  $\vec{B}$  continu is en dat  $\vec{H}_a = \vec{H}_{eq}(B)$  aan het oppervlak van de cylinder. Bestaat er echter een oppervlaktebarrière (barrière voor vortices om de supergeleider binnen te stromen of te verlaten, oppervlaktepinning die niet in  $j_c(B)$  verwerkt is), dan wordt de randvoorwaarde voor de tangentiële component van  $\vec{H}$  iets ingewikkelder. Voor dezelfde cylinder geldt dan dat  $H_a = H_{in}(B) > H_{eq}(B)$  als het oppervlak instabiel is voor het binnendringen van vortices en  $H_a = H_{uit}(B) < H_{eq}(B)$  als het oppervlak instabiel is voor de uittrede van vortices. Voor de tussenliggende waarden  $H_{uit}(B) < H_a < H_{in}(B)$  blijft de supergeleider in een soort metastabiele toestand, waarin noch vortices de cylinder ingaan noch de cylinder verlaten. De randvoorwaarden in het geval van oppervlaktepinning en de verwachte B-afhankelijkheid van  $H_{in}$  en  $H_{uit}$  worden uitgebreider behandeld in [CLE 74] en [CLE 79b].

Het is onmogelijk analytische uitdrukkingen te krijgen voor het fluxdichtheid profiel en de AC-verliezen voor grote AC-veldamplitudes. Enerzijds is dit vanwege het feit dat de vergelijkingen 2.60–2.67 zelf niet lineair zijn, anderzijds vanwege de niet-lineaire B-afhankelijkheid van  $j_c$ ,  $H_{eq}$ ,  $H_{in}$  en  $H_{uit}$ . Zinnvolle resultaten kunnen echter verkregen worden door de vergelijkingen te lineariseren. Dit is verantwoord wanneer de amplitude van het AC-veld klein is. Veronderstellen we derhalve de volgende gedaante voor het aangelegde veld :

$$H_a = H_0 + h_0 \cos \omega t \quad (2.68a)$$

$$B_a = B_0 + b_0 \cos \omega t, \quad (2.68b)$$

waarin  $h_0 \ll H_0$  en  $b_0 \ll B_0$ . We nemen verder aan dat er geen oppervlaktepinning aanwezig is, zodat  $H_{in} = H_{eq} = H_{uit}$ . In de supergeleider kunnen we dan schrijven :

$$H(r,t) = H_0 + h_1(r,t) \quad (2.69a)$$

$$B(r,t) = B_{eq}(H_0) + b_1(r,t) \quad (2.69b)$$

met  $h_1 \ll H_0$  en  $b_1 \ll B_{\text{eq}}(H_0)$ . Het resultaat van de linearisatie van de vgl. 2.60–2.67 is dan :

$$E = \rho_{f0} (j - j_c) \quad j > j_{c0} \quad (2.70a)$$

$$E = 0 \quad -j_{c0} < j < j_{c0} \quad (2.70b)$$

$$E = \rho_{f0} (j + j_c) \quad j < -j_{c0} \quad (2.70c)$$

Hierin is  $\rho_{f0}$  gedefinieerd in vgl. 2.46 en geldt :

$$j_{c0} = [j_c(B)]_{B=B_{\text{eq}}(H_0)} \quad (2.71)$$

verder geldt :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial(rE)}{\partial r} = -\frac{\partial b_1}{\partial t}, \quad (2.72)$$

$$-\frac{\partial h_1}{\partial r} = j \quad (2.73)$$

en

$$b_1 = \mu'_0 \mu_0 h_1, \quad (2.74)$$

met  $\mu'_0$  gedefinieerd in vgl. 2.47. Wanneer  $E \ll \rho_{f0} j_{c0}$  dan geldt de critical-state vergelijking voor  $h_1$  :

$$\frac{\partial h_1}{\partial r} = \pm j_{c0}. \quad (2.75)$$

Deze set vergelijkingen bepaalt het critical-state profiel van H en B in de supergeleider. We definiëren vervolgens  $H_b^*$  als het veld dat nodig is aan het oppervlak van de supergeleider om het critical-state profiel tot in het midden van de cylinder door te laten dringen.  $L_p$  is de penetratiediepte van het critical-state profiel voor een amplitude  $h_0$  van het aangelegde AC-veld :

$$H_b^* = j_{c0} R \quad (2.76)$$

en

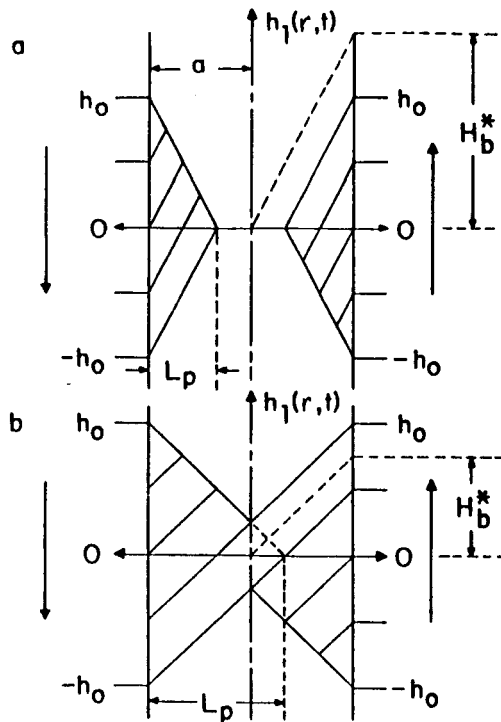
$$L_p = \frac{h_0}{j_{c0}}. \quad (2.77)$$



In figuur 2.16 is het critical-state profiel van  $h_1(r,t)$  als functie van  $r$  weergegeven. De twee verschillende situaties,  $h_0 < H_b^*$  ( $L_p < R$ ) en  $h_0 > H_b^*$  ( $L_p > R$ ), worden in respectievelijk figuur 2.16a en 2.16b apart getoond. De gemiddelde magnetische fluxdichtheid  $\bar{b}_1(t)$  wordt eenvoudig verkregen uit vgl. 2.74 :

$$\bar{b}_1(t) = \frac{2}{R^2} \int_0^R dr r b_1(r,t) . \quad (2.78)$$

Vullen we  $\bar{b}_1(t)$  in in vgl. 2.30 met  $n=1$ , dan vinden we voor de complexe



**fig. 2.16 :** Profielen van het magnetisch veld  $h_1(r,t)$  in een type-II supergeleider met bulk-pinning tegen  $r$  : (a)  $h_0 < H_b^*$  en (b)  $h_0 > H_b^*$ . De linkerkant toont het geval dat  $H_a$  afneemt in de tijd, de rechterkant dat  $H_a$  toeneemt met de tijd.

permeabiliteit  $\tilde{\mu} = \mu' + i\mu''$  :

$$\mu' = \mu'_0 g_1(x) \tag{2.79a}$$

$$\mu'' = \mu'_0 g_2(x) \tag{2.79b}$$

met, in tegenstelling tot het eerder in §2.4.2 behandelde geval van flux-flow verliezen,  $x = h_0/H_b^* = L_p/R$ . Voor  $g_1(x)$  en  $g_2(x)$  gelden ingewikkelde verbanden [CLE 79]. Ze zijn in figuur 2.17 weergegeven. Er geldt dat  $g_2$  maximaal is voor  $x=1$  en in de situatie van zwakke pinning vindt men dat  $H_b^* \rightarrow 0$ ,  $L_p \rightarrow \infty$ ,  $g_2 \rightarrow 0$  en  $g_1 \rightarrow 1$ , zodat  $\tilde{\mu} \rightarrow \mu'_0$ .

Zowel  $\mu'$  als  $\mu''$  zijn sterk afhankelijk van  $H_0$  via  $\mu'_0$  en  $x = h_0/H_b^*$ , die via  $j_{c0}$  van  $H_0$  afhangt. Het energieverlies per eenheid van volume per periode wordt nu :

$$W_V = \frac{\pi b_0^2}{\mu_0} \mu'_0 g_2(x) . \tag{2.80}$$

Voor vaste waarden van  $b_0$  en  $\omega$  is  $W_V$  maximaal als  $\mu'_0 g_2(x)$  maximaal is. Behalve bij  $H_0 = H_{c1}$  echter, geldt dat  $\mu'_0$  langzaam varieert met  $H_0$ , zodat de verliezen

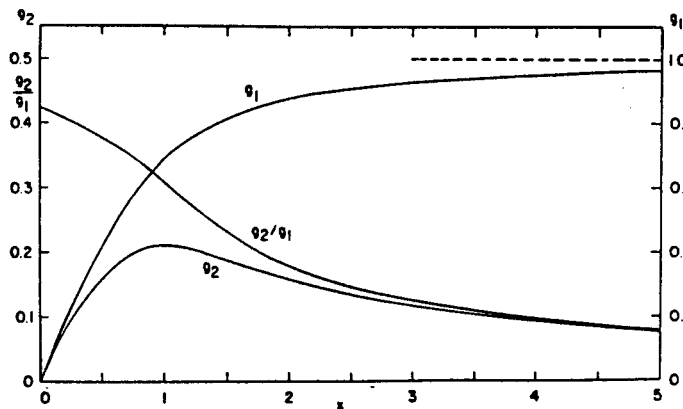


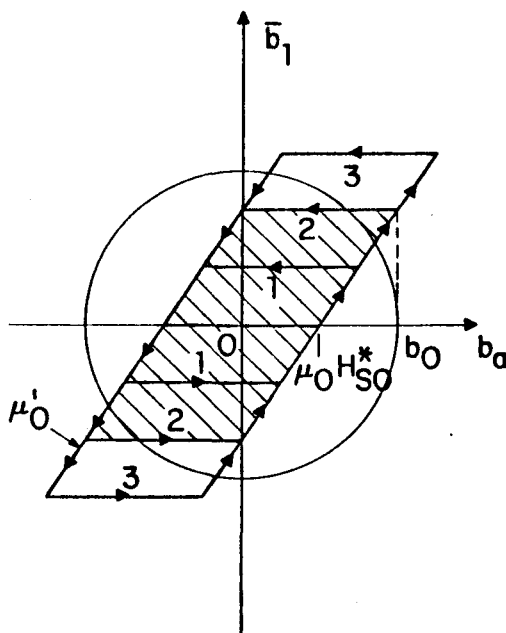
fig. 2.17 : De functies  $g_1 = \mu'/\mu'_0$  (rechterschaal) en  $g_2 = \mu''/\mu'_0$  (linkerschaal) tegen  $x = h_0/H_b^* = L_p/R$  voor hystereseverliezen bij bulk-pinning. Het quotiënt  $g_2/g_1 = \mu''/\mu'$  is ook geschetst (linkerschaal).

maximaal zijn voor  $x \approx 1$ ,  $h_0 \approx H_b^*$  of  $L_p \approx R$ . Dit laatste houdt in dat het critical-state profiel juist tot het midden van de cylinder is doorgedrongen.

Tot nu toe hebben we de oppervlaktepinning niet in de beschouwing meegenomen. Wel zijn begrippen als  $H_{in}(B)$  en  $H_{uit}(B)$  genoemd. Als we nu de frequentie  $\omega$  van het AC-veld zo laag kiezen dat flux-flow verliezen te verwaarlozen zijn en de bulk kritische stroomdichtheid zo klein is dat we bulk-pinning hystereseverliezen ook kunnen vergeten, zodat er slechts verliezen aan het oppervlak optreden als vortices de oppervlaktebarrière passeren, dan vinden we de in figuur 2.18 gegeven hystereselus [CLE 79]. Hierin is  $H_s^*(B)$  gedefinieerd als :

$$H_s^* = \frac{1}{2} (H_{in} - H_{uit}) . \quad (2.81)$$

Voor  $h_0 \leq H_{s0}^*$ , met



**fig. 2.18 :** *Hystereselus van een cilindrische type-II supergeleider, indien slechts verliezen aan het oppervlak optreden (oppervlaktebarrière).*

$$H_{s0}^* = [H_s^*(B)]_{B=B_{eq}(H_0)}, \quad (2.82)$$

geldt dat de cylinder in een metastabiele toestand blijft en er geen vortices in of uit de cylinder gaan. Hier is weer gebruik gemaakt van een linearisatieproces voor het geval  $h_0 \ll H_0$  en  $b_0 \ll B_0$ , omdat het in rekening brengen van de B-afhankelijkheid van  $H_{in}(B)$  en  $H_{uit}(B)$  nogal gecompliceerd is en numerieke oplossingsmethoden vereist [CLE 79b]. De magnetische fluxdichtheid in de supergeleider is dus weer :

$$H = H_0 + h_1 \quad (2.83a)$$

$$B = B_{eq}(H_0) + b_1, \quad (2.83b)$$

met  $h_1 \ll H_0$  en  $b_1 \ll B_{eq}(H_0)$ . Gedurende een periode  $0 \leq \omega t \leq 2\pi$  vinden we dan :

$$b_1 = \mu'_0 \mu_0 h_1 \quad (2.84a)$$

met

$$h_1 = h_0 - H_{s0}^*, \quad 0 \leq \omega t \leq \theta \quad (2.84b)$$

$$= h_a + H_{s0}^*, \quad \theta \leq \omega t \leq \pi \quad (2.84c)$$

$$= -h_0 + H_{s0}^*, \quad \pi \leq \omega t \leq \pi + \theta \quad (2.84d)$$

$$= h_a - H_{s0}^*, \quad \pi + \theta \leq \omega t \leq 2\pi. \quad (2.84e)$$

Hierin is :

$$h_a = h_0 \cos \omega t, \quad (2.85)$$

$$\cos \theta = 1 - 2u \quad (2.86)$$

en

$$u = H_{s0}^*/h_0 \leq 1. \quad (2.87)$$

Substitutie in vgl. 2.30 levert weer uitdrukkingen voor  $\tilde{\mu} = \mu' + i\mu''$  :

$$\mu' = \mu'_0 F_1(u) \quad (2.88a)$$

$$\mu'' = \mu''_0 F_2(u). \quad (2.88b)$$

De functies  $F_1$  en  $F_2$  [CLE 79] zijn geschetst in figuur 2.19. De energieverliezen per volumeëenheid per periode kan nu op de bekende manier uit het oppervlak van de

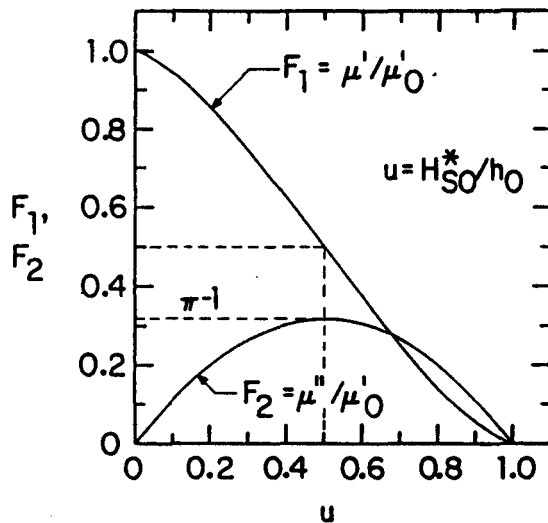


fig. 2.19 : De functies  $F_1(u)$  en  $F_2(u)$  (zie vgl. 2.88) als functie van  $u = H_{S0}^*/h_0$  voor oppervlakte-pinningverliezen.

hystereselus van figuur 2.18 berekend worden (zie bij flux-flow verliezen in §2.4.2 en bij bulkpinning verliezen eerder in deze paragraaf).

Tot slot van deze paragraaf worden in tabel 2.1 enkele belangrijke resultaten samengevat. Verschillende conclusies van de drie behandelde verliesmechanismen (flux-flow, bulkpinning en oppervlaktepinning) worden erin vermeld. Het is echter niet zo dat deze drie mechanismen simpelweg bij elkaar opgeteld kunnen worden om zo het totale energieverlies te verkrijgen. Er bestaat een sterke wisselwerking tussen de drie mechanismen, die het bijzonder moeilijk maakt het totale energieverlies te berekenen, als deze mechanismen van gelijke grootte-orde zijn.

Verlies- mechanisme	Flux-flow (visceuze verliezen)	Bulk- pinning	Oppervlakte- pinning (opp. barrière)
Karakteristieke grootheid	$\delta_f$ of $\tau_f$	$H_b^*$ of $L_p$	$H_s^*$
Maximum in $\mu''/\mu_0'$ vs $H_0$ als :	$\delta_f = 0.56 a$ $\omega\tau_f = 3.2$	$h_0 = H_b^*$ $L_p = a$	$h_0 = 2H_s^*$
Zijn $\mu'$ en $\mu''$ afhankelijk van			
$H_0$ ?	Ja	Ja	Ja
$\omega$ ?	Ja	Nee	Nee
$h_0$ ?	Nee	Ja	Ja

tabel 2.1 : *Samenvatting van de resultaten voor de drie verliesmechanismen in type-II supergeleiders. De symbolen zijn in deze paragraaf gedefinieerd.*

§2.5 : Het gekoppelde kringmodel van Ishida

In [ISH 81] wordt de respons van een gekoppelde supergeleider, zoals ook de H-T supergeleiders, op een aangelegd klein AC magnetisch veld op een iets andere manier bekeken dan het beeld van §2.3. Er wordt een fenomenologisch model gehanteerd waarin aangenomen is dat het netwerk van gekoppelde korrels zich gedraagt als één enkele kring als geheel. De kritische stroom van deze kring heeft dezelfde temperatuurafhankelijkheid als de individuele juncties tussen de korrels.

We beschouwen nu eerst een supergeleidende kring met een weak-link koppeling. Als er een klein AC-veld aangelegd wordt, dan zal er een altenerende afschermstroom gaan lopen en de magnetisatie  $m(t)$  van de kring hangt dus sterk af van de I-V karakteristiek van de junctie. Overschrijdt de stroomdichtheid in de kring de kritische waarde  $j_c$ , dan zal er een fluxquantum  $\Phi_0$  binnendringen (zie bv [ROS 78]). De magnetisatie  $m(t)$  daalt nu met een bedrag  $\Phi_0/\mu_0 A$ , waarin A de oppervlakte van de kring is. Vervolgens neemt  $m(t)$  weer toe met  $h(t)$ , het aangelegde AC-veld, totdat  $j_c$  opnieuw bereikt is en er een tweede fluxquantum de kring binnendringt. Dit proces gaat door totdat  $h(t)$  af begint te nemen. In figuur 2.20 is schematisch het boven beschreven verband tussen  $m(t)$  en  $h(t)$  weergegeven,

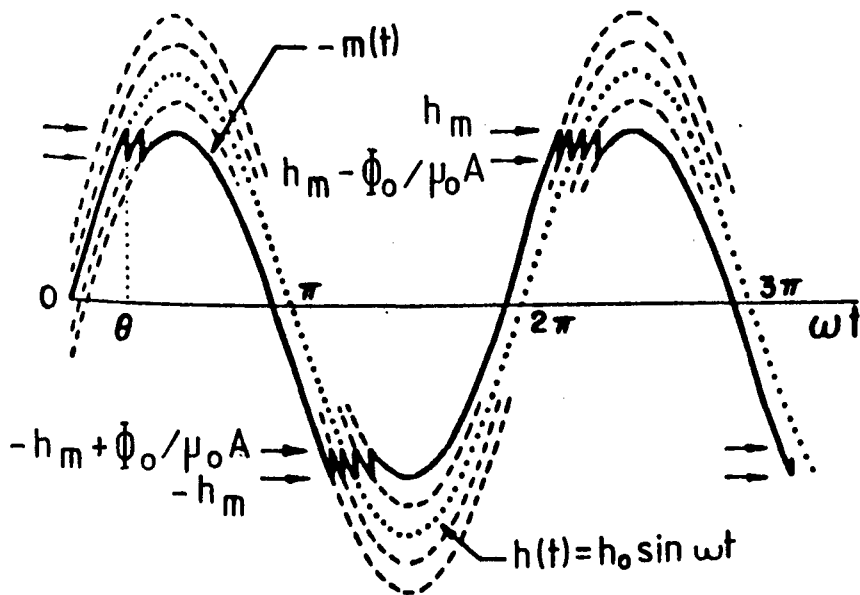


fig. 2.20 : Verband tussen  $h(t)$  en  $m(t)$ . We nemen hier aan dat er twee fluxquanta in de supergeleidende kring kunnen binnendringen.

waarin voor het gemak wordt aangenomen dat er slechts twee fluxquanta de kring kunnen binnendringen voor gegeven  $h_0$ .

In een ensemble van gekoppelde korrels kan een aantal supergeleidende kringen gevormd worden om het aangelegde veld af te schermen. Voor de toepassing van het bovenstaande model is het dan nodig rekening te houden met een grote verscheidenheid aan kritische stroomdichtheden van de individuele kringen. In de praktijk is het echter niet mogelijk zo'n aanpak te hanteren, zodat naar een benadering voor het gehele preparaat gezocht moet worden. In het nu volgende nemen we dan aan dat de verzameling van supergeleidende kringen zich in totaal gedragen als één kring met een corresponderende  $j_c$ . In figuur 2.21 worden  $m(t)$  en  $e(t)$ , het uit-fase signaal tussen  $m(t)$  en  $h(t)$ , getoond die op grond van deze aanname verwacht kunnen worden. Er is verondersteld dat  $\Phi_0 \ll \mu_0 h_0 A$ , zodat het

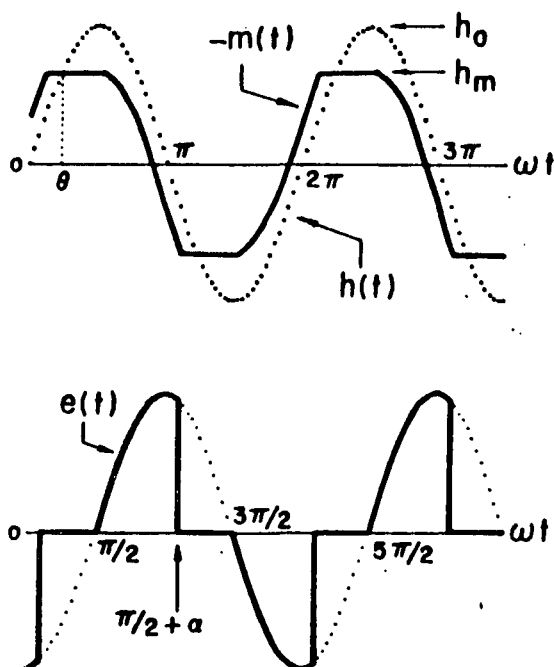


fig. 2.21 : Het verwachte verloop van  $m(t)$  en  $e(t)$  als respons op het aangelegde veld  $h(t)$  voor het geval  $\Phi_0 \ll \mu_0 h_0 A$ .



gerafelde patroon in figuur 2.20 als gevolg van het binnendringen van fluxquanta vervangen kan worden door een rechte lijn. Definieren we  $h_m$  als het magnetisch veld dat een superstroom  $j_c$  in de kring induceert (zie figuur 2.20), dan kunnen we de supergeleidende overgang uitdrukken in een nieuwe parameter  $\theta$ , met  $\sin \theta = h_m/h_0$ , die varieert van nul in de supergeleidende toestand tot  $\pi/2$  in de normale toestand. Met behulp van de Fourier analyse kan  $m(t)$  geschreven worden als :

$$m(t) = \sum_{n=1}^{\infty} h_0 \{ \chi'_n \sin n\omega t + \chi''_n \cos n\omega t \}. \quad (2.89)$$

Hierin zijn  $\chi'_n$  en  $\chi''_n$  gedefinieerd als :

$$\chi'_n = \frac{1}{h_0\pi} \int_0^{2\pi} m(t) \sin(n\omega t) d(\omega t) \quad (2.90a)$$

en

$$\chi''_n = \frac{1}{h_0\pi} \int_0^{2\pi} m(t) \cos(n\omega t) d(\omega t). \quad (2.90b)$$

Substitutie van  $m(t)$  uit figuur 2.21 in vgl 2.90 levert de volgende uitdrukkingen :

$$\chi'_1 = -\frac{1}{\pi\mu_0} \left( \alpha - \frac{1}{2} \sin 2\alpha \right) \quad (2.91a)$$

$$\chi''_1 = \frac{1}{\pi\mu_0} \sin^2 \alpha \quad (2.91b)$$

en

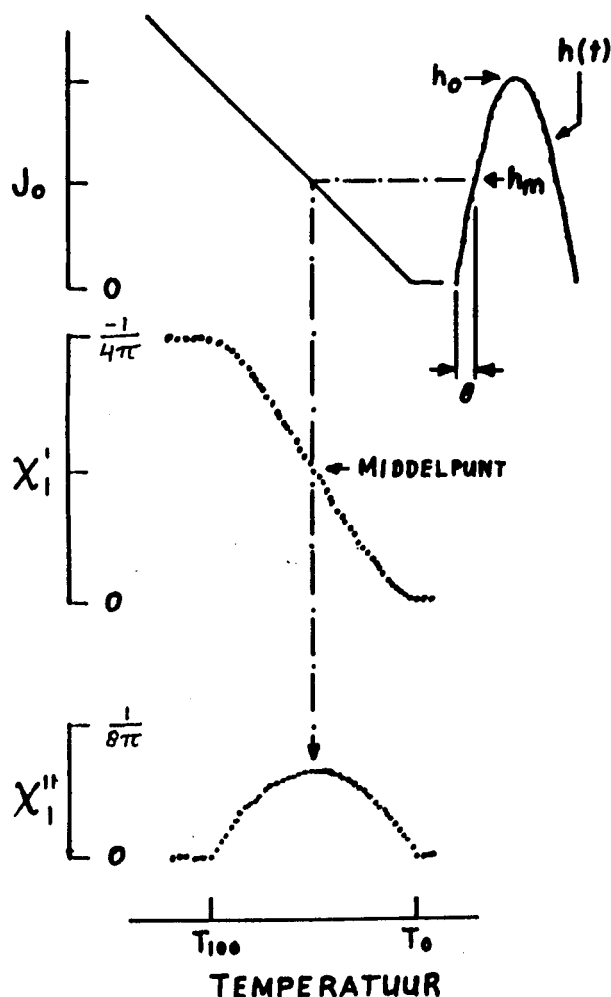
$$\chi'_n = \frac{1}{n\pi\mu_0} \left[ \frac{\sin(n+1)\alpha}{n+1} - \frac{\sin(n-1)\alpha}{n-1} \right] \quad (2.92a)$$

$$\chi''_n = \frac{-1}{n\pi\mu_0} \left[ \frac{\cos(n+1)\alpha - 1}{n+1} - \frac{\cos(n-1)\alpha - 1}{n-1} \right], \quad (2.92b)$$

met  $\alpha = 2 \sin^{-1}(\sin\theta)^{\frac{1}{2}}$  en  $n=3,5,7,\dots$ . Voor even waarden van  $n$  zijn  $\chi'_n$  en  $\chi''_n$  gelijk aan nul. Het verloop van  $\chi'_1$  en  $\chi''_1$  als functie van de temperatuur in het geval de kritische stroomdichtheid  $j_c(T)$  zich gedraagt als die van een Josephson junctie [AMB 63] :

$$j_c(T) = \frac{\pi \Delta(T)}{e R_n} \tanh \frac{\Delta(T)}{2 k_B T} \quad (2.93)$$

is weergegeven in figuur 2.22.  $R_n$  is de normale tunnelweerstand per oppervlakteëenheid en  $\Delta(T)$  is de energie-gap. Dichtbij  $T_c$  heeft  $j_c(T)$  een  $(1-T/T_c)$ -afhankelijkheid die volgt uit de BCS-relatie voor  $\Delta(T)$ . Voor een tunneljunctie hebben zowel  $\chi_1'$  als  $\chi_1''$  een symmetrische overgangskromme.



**fig. 2.22 :** Het verloop van  $\chi_1'$  en  $\chi_1''$  als functie van de temperatuur in een gekoppeld kringmodel dat tunneljuncties bevat. Eerst worden  $\chi_1'$  en  $\chi_1''$  bepaald in termen van  $\theta$  (vgl. 2.91) en vervolgens wordt de bijbehorende temperatuur verkregen door gebruik te maken van de  $T$ -afhankelijkheid van  $j_c(T)$ .

Afhankelijk van de temperatuurafhankelijkheid van  $j_c(T)$  kunnen  $\chi_1'$  en  $\chi_1''$  echter ook een asymmetrische vorm aannemen. Als we daarentegen  $\chi_1'$  tegen  $\chi_1''$  uitzetten, dan krijgen we altijd een symmetrische curve, zoals getekend in figuur 2.23. Deze wordt immers alleen bepaald door vgl 2.91 en is zodoende een testmogelijkheid voor dit gekoppelde kringmodel. Een andere mogelijkheid dit model te controleren is  $|\chi_3|$ . Volgens vgl 2.92 geldt n.l. :

$$|\chi_3| = |\chi_3' + i\chi_3''| = \frac{1}{3\pi\mu_0} \sin^2 \alpha. \quad (2.94)$$

Vergelijking van vgl 2.91b en 2.93 leert ons dan dat  $\chi_1'' = 3|\chi_3|$ .

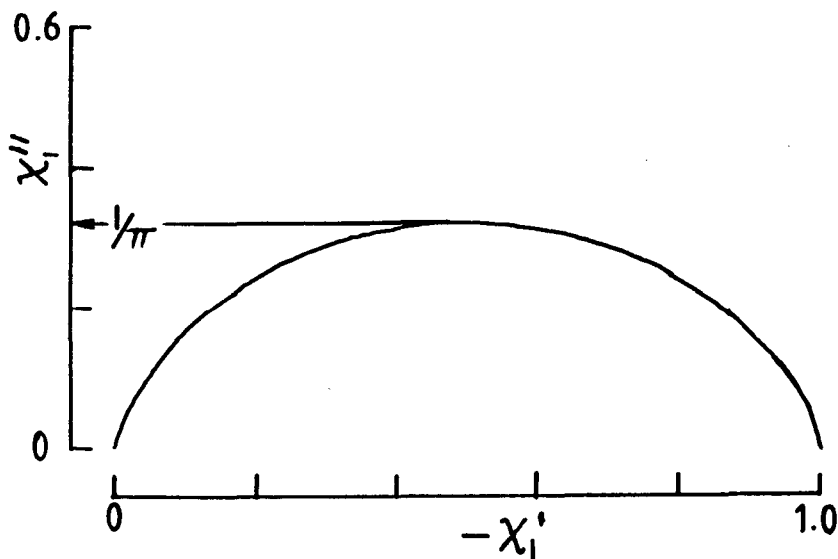


fig. 2.23 :  $\chi_1'$  tegen  $\chi_1''$  volgens het gekoppelde kringmodel.

## §2.6 : Flux-kruip en het TAFF-model (thermally assisted flux flow)

In deze paragraaf zullen begrippen als pinning en ontpinning van vortices, flux-kruip en in het bijzonder het TAFF-model (Ned. : TGO = thermisch geactiveerde ontpinning) behandeld worden. Voor technische toepassingen is een belangrijke parameter het quotiënt van de pinpotentiaal  $U$  en de thermische activeringsenergie  $k_B T$ . Deze bedraagt voor traditionele lage-temperatuur (L-T) supergeleiders ongeveer 100. Bij H-T supergeleiders is dit quotiënt echter van de orde-grootte 10, zodat thermisch geactiveerde ontpinning van fluxbundels (flux-kruip) een belangrijke rol gaat spelen, in tegenstelling tot de L-T supergeleiders. Als een van de eersten interpreteerden Yeshurun en Malozemoff tijdafhankelijke magnetisatie en frequentieafhankelijkheid van de dynamische susceptibiliteit op basis van flux-kruip ([YES 88] en [MAL 88]). Zij introduceerden het idee van de irreversibiliteitslijn in het (H,T)-fasediagram, die de gebieden van reversibel en irreversibel magnetisch gedrag scheidt.

Recent ontwikkelde Kes et al. [KES 89] de "thermally assisted flux flow" (TAFF)-theorie om thermisch geactiveerde verschijnselen in H-T supergeleiders te beschrijven. Deze theorie is gebaseerd op het oplossen van een diffusievergelijking voor de beweging van fluxlijnen. Voorspellingen worden bijvoorbeeld gedaan over het gedrag van de AC-susceptibiliteit in de aanwezigheid van een statisch DC-veld. De tijdafhankelijke respons van de magnetisatie op een (kleine) veldstap krijgt de aandacht in [BRE 89].

De TAFF-theorie kan juist bij BiCaSrCuO-preparaten een interessant hulpmiddel zijn bij het interpreteren van de AC-susceptibiliteitsmetingen, omdat de flux-pinningkrachten in het Bi-systeem een factor 5 kleiner zijn dan bij YBaCuO. Dit komt door het ontbreken van twinvlakken bij BiCaSrCuO, die voor sterke pinningkrachten kunnen zorgen. Bij YBaCuO zijn deze twinvlakken wel aanwezig [BER 89]. Dit houdt in dat de pinpotentiaal  $U$  in het Bi-systeem veel kleiner is dan die bij YBaCuO.

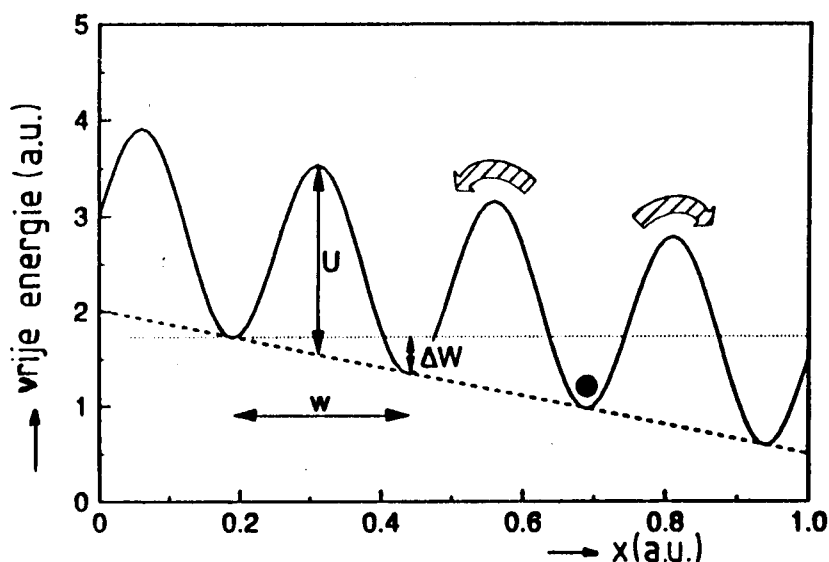
In het TAFF-model kunnen onafhankelijke 'deeltjes' van de ene potentiaalput naar een andere springen onder invloed van thermische activering en een kleine drijvende kracht. De drijvende kracht kan een stroom door het preparaat zijn, maar ook een gradiënt in de magnetische fluxdichtheid. In het geval van kleine drijvende krachten reduceert dan de continuïteitsvergelijking voor fluxlijnen tot een eenvoudige diffusievergelijking. Eén van de moeilijkheden is nu het definiëren van de

onafhankelijke deeltjes, de potentiaalput, de springafstand en de probeerfrequentie waarmee de deeltjes proberen te ontsnappen uit hun potentiaalput. Kes et al. [KES 89] nemen voor zo'n 'deeltje' een volume  $V_c$ , waarin de fluxlijnen nog gecorreleerd zijn. Dit gecorreleerde volume is elastisch onafhankelijk van het overige fluxlijnenrooster en speelt dezelfde rol als de fluxbundel in de theorie van Anderson [AND 62].

In figuur 2.24 zijn enkele parameters die in de TAFF-theorie een rol spelen, gedefinieerd. Er is een één-dimensionale periodieke pinpotentiaal weergegeven.  $U$  is de hoogte van de pinpotentiaal zonder drijvende krachten,  $w$  is de springafstand en  $\Delta W$  is de arbeid die door de drijvende krachten wordt verricht als een fluxbundel van de ene potentiaalput springt naar een andere. Tussen de pinningenergie en de maximale macroscopische pinningkracht per volumeëenheid ( $F_p = j_c B$ ) bestaat de volgende relatie :

$$U = F_p V_c r_p, \quad (2.95)$$

met  $r_p$  de reikwijdte van de pinpotentiaal. In figuur 2.24 is  $r_p = w$ , maar dit is niet



**fig. 2.24 :** De vrije energie als functie van de afstand in het één-dimensionale geval. De parameters  $U$ ,  $\Delta W$  en  $w$  zijn in de tekst uitgelegd. De zwartgekleurde cirkel stelt een 'fluxbundel' voor.

altijd het geval. Als de pinning wordt veroorzaakt door defecten, waarvan de grootte klein is t.o.v. de Ginzburg-Landau-coherentielengte  $\xi$ , dan geldt voor geïsoleerde vortices ( $b = B/B_{c2} < 0.2$ ) dat  $r_p \approx \xi$  en voor elkaar overlappende vortices ( $b > 0.2$ )  $r_p \approx a_0/2$ . Hier is  $a_0$  de afstand tussen de vortexkernen en wordt gegeven door  $a_0 \approx \sqrt{\Phi_0/B}$ . Voor grote defecten is de afmeting van het defect een geschikte maat voor  $r_p$ .

Wanneer nu een fluxbundel verspringt over een afstand  $w$ , dan wordt de arbeid  $\Delta W$ , die door de drijvende kracht wordt verricht, gegeven door :

$$\Delta W = j_c B V_c w = U \left[ \frac{j}{j_c} \right] \left[ \frac{w}{r_p} \right]. \quad (2.96)$$

$j$  is de macroscopische stroomdichtheid. Voor de critical-state vinden we  $\Delta W = U$  als  $r_p = w$  (geen thermische activering). Zonder een drijvende kracht geldt dat de springfrequentie naar links  $\nu_L$  even groot is als die naar rechts  $\nu_R$  :

$$\nu_L = \nu_R = \nu_0 \exp(-U/k_B T), \quad (2.97)$$

met  $\nu_0$  een probeerfrequentie. Onder invloed van een drijvende kracht ontstaat er een beweging van fluxbundels in de richting van de kracht met een springfrequentie  $\nu$  :

$$\nu = \nu_R - \nu_L = 2 \nu_0 \exp(-U/k_B T) \sinh(\Delta W/k_B T). \quad (2.98)$$

De netto snelheid waarmee fluxbundels door de supergeleider lopen is  $v = \nu w$ . Met behulp van de uitdrukking voor de flux van vortices ,

$$\vec{\Phi} = -v B \frac{\vec{\nabla} B}{|\nabla B|}, \quad (2.99)$$

kan de continuïteitsvergelijking voor magnetische flux geschreven worden als :

$$\frac{\partial B}{\partial t} = -\vec{\nabla} \cdot \vec{\Phi} = \vec{\nabla} \cdot \left[ 2 \frac{\vec{\nabla} B}{|\nabla B|} B w \nu_0 \exp(-U/k_B T) \sinh(\Delta W/k_B T) \right]. \quad (2.100)$$

In de conventionele flux-kruipsituatie geldt  $U \gg k_B T$  behalve dicht bij  $T_c$ , zodat

flux-kruip slechts optreedt als  $\Delta W \approx U$ . Voor de volledigheid zullen aan het einde van deze paragraaf enkele resultaten van deze limietsituatie genoemd worden. Bij H-T supergeleiders is  $U/k_B T \approx 10$  in een bepaald gedeelte van het (H,T)-fasediagram en er zal dan zelfs bij kleine drijvende krachten flux-kruip optreden. De sinus hyperbolicus in vgl. (2.100) mag nu benaderd worden volgens  $\sinh x \approx x$ . We spreken hier van de TAFF-limiet. Nemen we voor de supergeleider een cilindrische vorm aan, dan gaat vgl. (2.100) over in een diffusievergelijking :

$$\frac{\partial B}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r D \frac{\partial B}{\partial r} \right], \quad (2.101)$$

met  $r \leq a$ , de straal van de cylinder en D een diffusieconstante, gegeven door :

$$D = \frac{2\nu_0 B^2 v_c w^2}{\mu_0 k_B T} \exp(-U/k_B T). \quad (2.102)$$

In principe is vgl. 2.101 erg ingewikkeld, omdat D zowel van B als van T afhankelijk is. Voor kleine drijvende krachten echter is j klein en kan de inductie in de supergeleider geschreven worden als een constant gedeelte en een verstoring :  $B = B_0 + \delta B$ . Voor  $\delta B \ll 0.1 B_0$  mag D vervangen worden door  $D_0 = D(B=B_0)$  [BER 89], zodat vgl. 2.101 reduceert tot :

$$\frac{\partial B}{\partial t} = D_0 \left[ \frac{1}{r} \frac{\partial B}{\partial r} + \frac{\partial^2 B}{\partial r^2} \right]. \quad (2.103)$$

Bij AC-susceptibiliteitsmetingen geldt de randvoorwaarde :

$$H(t) = H_0 + h_0 \sin(2\pi f t), \quad (2.104)$$

waarbij de amplitude van het wisselveld  $h_0$  veel kleiner is dan de grootte van het statische veld  $H_0$  om in de TAFF-limiet te blijven. De oplossing van vgl. 2.103 met bovenstaande randvoorwaarde (vgl. 2.104) wordt gegeven door :

$$\delta B(r,t) = \mu_0 h_0 A(r) \sin\{2\pi f t + \Phi(r)\}, \quad (2.105)$$

met  $A(r)$  en  $\Phi(r)$  respectievelijk de amplitude en de fase van de functie

$$Z(r) = \frac{I_0(rk\sqrt{i})}{i I_0(ak\sqrt{i})}. \quad (2.106)$$

Hierin is  $I_0$  de nulde orde Besselfunctie en geldt voor  $k$  de definitie  $k = (2\pi f/D_0)^{\frac{1}{2}}$ . De gemiddelde inductie in de supergeleider volgt nu uit integratie over de cylinder en bepaalt de uitdrukkingen voor  $\chi'$  en  $\chi''$ . Een diamagnetische onset wordt gerealiseerd voor een bepaalde  $ka = M_c$ . Met behulp van vgl. 2.102 kan dan worden afgeleid voor  $U$  :

$$U = k_b T_0 \ln \left[ \frac{M_c^2 \nu_0 B^2 V_c w^2}{\pi f \mu_0 k_B T_0 a^2} \right], \quad (2.107)$$

met  $T_0$  de diamagnetische onset-temperatuur, zoals die gemeten wordt bij de AC-susceptibiliteit. Kes et al. [KES 89] tonen aan dat verwacht moet worden dat  $M_c$  ongeveer 1 is. Nemen we een ander criterium voor  $T_0$ , bijvoorbeeld de temperatuur waarbij  $\chi''$  maximaal is, dan verandert in essentie slechts de waarde van  $M_c$ .

Tot slot van deze paragraaf zullen nog enkele samenvattende opmerkingen gemaakt worden. In het hierboven besproken TAFF-model komt geen afhankelijkheid van de amplitude van het aangelegde wisselveld  $h_0$  voor. Dit vertoont grote overeenkomst met de beschrijving van  $\mu'$  en  $\mu''$  ( $\mu = \chi + 1$ ) in termen van flux-flowverliezen, zoals behandeld in §2.4. In vgl. 2.53 worden n.l. uitdrukkingen voor  $\mu'$  en  $\mu''$  gegeven, die sterk afhankelijk zijn van de frequentie van het wisselveld en van de grootte van het DC-veld, maar niet van  $h_0$ . Deze overeenkomst met het TAFF-model hoeft ons ook niet te verbazen, aangezien de uitgangsvergelijking van het TAFF-model (vgl. 2.103) net als in het flux-flow geval een diffusievergelijking is. De diffusiecoëfficiënt  $D_0$  kan dus vergeleken worden met  $D_{f0}$  (vgl. 2.52).

Zoals eerder opgemerkt bij vgl. 2.100, vindt bij voldoende lage temperatuur de thermische activering in veel mindere mate plaats ( $U \gg k_B T$ ) en zal er pas flux-kruip optreden als de drijvende kracht dezelfde grootte-orde heeft als de pinpotential :  $\Delta W \approx U$ . In dat geval is de stroomdichtheid waarbij relaxatie optreedt nagenoeg gelijk aan de kritische stroomdichtheid  $j_c$ , die gegeven wordt door  $j_c = F_p/B$ . Als aan deze voorwaarde wordt voldaan, spreekt men van het



flux-kruipmodel [MAL 88]. Binnen dit model blijkt de relatie tussen de irreversibiliteitstemperatuur  $T_{\text{irr}}$ , d.i. de temperatuur waarbij  $\chi''$  maximaal is, en de aanwezige magnetische inductie  $B$  gegeven te worden door  $(1-T_{\text{irr}}/T_c) \sim B^q$ , met  $q = \frac{2}{3}$  of  $\frac{3}{4}$ , afhankelijk van de exacte temperatuur- en veldafhankelijkheid van de hoogte  $U$  van de pinpotentiaal. Tevens voorspelt dit model, net als het TAFF-model, een hoofdzakelijk logaritmische frequentieafhankelijkheid voor  $T_{\text{irr}}$ .

### HOOFDSTUK 3 : MEETOPSTELLING

De dynamische susceptibiliteit is gemeten met behulp van een wederkerige inductiebrug, die in onze vakgroep zelf ontwikkeld is. Het meetsysteem berust op de meting van de wederkerige inductie van een spoelenstelsel. Behalve van de geometrie en het aantal windingen hangt de wederkerige inductie af van de magnetische susceptibiliteit  $\chi$ . Beschouwen we daartoe de configuratie van figuur 3.1. Beide secundaire spoelen zijn identiek, maar in tegengestelde richting gewonden, met coëfficiënt van wederkerige inductie  $M$ .

Op de primaire meetspoel wordt een sinusvormige wisselspanning aangesloten. Als er geen preparaat aanwezig is, zal de wederkerige inductie van dit spoelenstelsel nul zijn. Plaatst men echter een preparaat in één van de secundaire spoelen, dan is de wederkerige inductie een directe maat voor de susceptibiliteit van het preparaat. In het geval van een wisselspanning op de primaire spoel, meet men de dynamische susceptibiliteit  $\chi' + i\chi''$ , die een complexe grootte is. Voor zeer lage frequenties gaat  $\chi''$  naar nul en vinden we  $\chi' = \chi_{\text{statisch}} = M/H$ . De wederkerige inductie wordt gemeten met een elektrische meetbrug, waarvan het prinscipeschema in figuur 3.2 is weergegeven. De meetstroom  $I_m$  en de secundaire spanning  $V_{\text{sec}}$  corresponderen met die uit figuur 3.1. De geïnduceerde spanning  $V_{\text{sec}}$  wordt nu gegeven door :

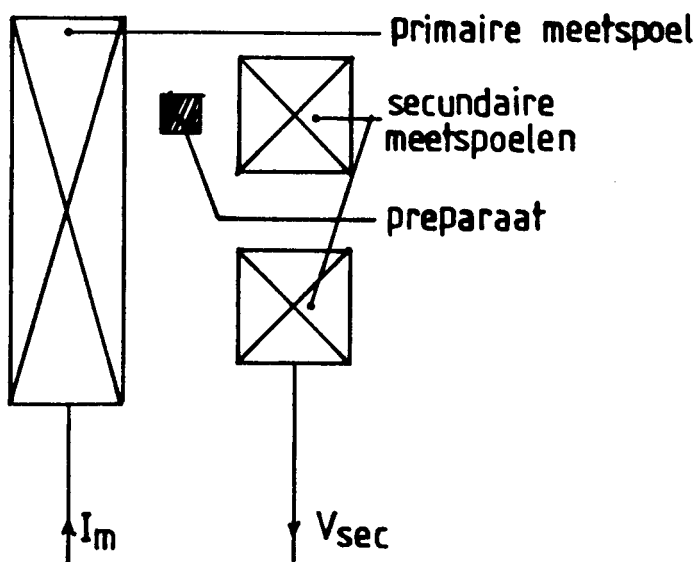


fig. 3.1 : *Principe wederkerige inductiebrug.*

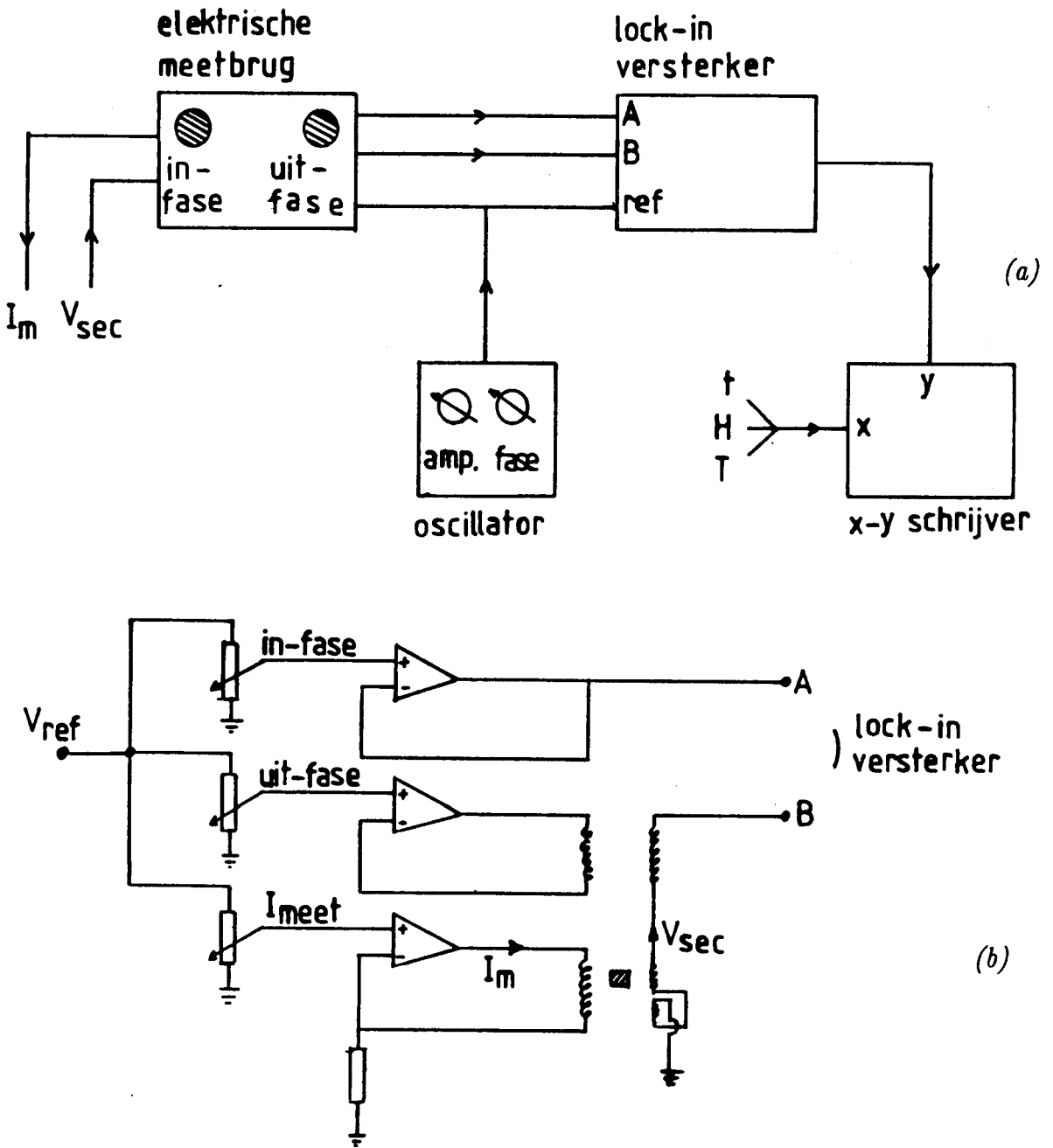


fig. 3.2 : (a) Schema elektronische meetopstelling. (b) Principeschema meetbrug.

$$V_{\text{sec}} = \omega M f (\chi'' + i\chi') I_m, \tag{3.1}$$

- waarin M : de coëfficiënt van wederkerige inductie,
- f : de vulctor,
- $\chi', \chi''$  : het reële- en het imaginaire gedeelte van de susceptibiliteit,
- $I_m$  : de stroom door de primaire meetspoel.

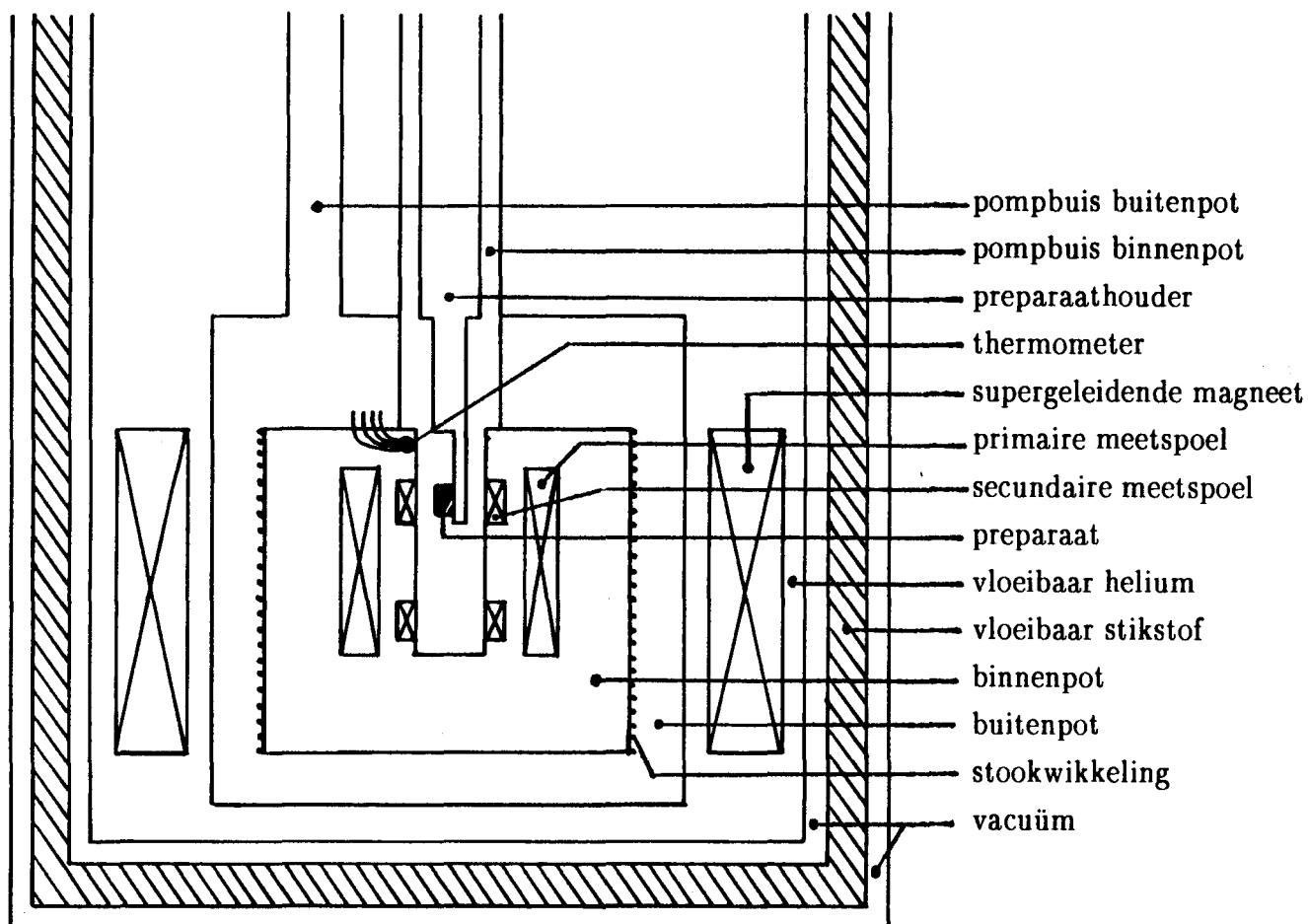


fig. 3.3 : *Dynamische susceptibiliteitsopstelling.*

Met behulp van deze configuratie kan de dynamische susceptibiliteit gemeten worden als functie van de frequentie  $\omega$  en als functie van de amplitude  $h_0$  van het aangelegde wisselveld. Gemeten is bij frequenties variërend van 10 Hz tot 10 kHz en bij amplituden van 8 mOe tot 800 mOe.

Om bij temperaturen afnemend tot 4.2 K (en evt ook nog lager tot 1.2 K) te kunnen meten, is het spoelstelsel geplaatst in een conventionele  $^4\text{He}$ -cryostaat, waarvan in figuur 3.3 een schets is gegeven. Een superspoel zorgt er tevens voor dat er desgewenst bij hoge statische magneetvelden gemeten kan worden. DC velden tot 5 T zijn realiseerbaar. In hoofdstuk 4 zullen de metingen verricht met de opstelling zoals boven beschreven, gepresenteerd worden.

## HOOFDSTUK 4 : MEETRESULTATEN EN DISCUSSIE

### §4.1 : Inleiding

In dit hoofdstuk worden de belangrijkste meetresultaten gepresenteerd en besproken. Drie BiCaSrCuO-preparaten met verschillende microstructuur zullen hierbij aan de orde komen. Paragraaf 4.2 zal gewijd zijn aan een preparaat dat via een normaal sinterproces gefabriceerd is, en aan een preparaat dat vervaardigd is door gebruik te maken van een zone-smeltproces. In §4.3 wordt een ander gesinterd preparaat, dat onder een 10 maal zo hoge druk geperst is, behandeld. Er zal hier getracht worden het een en ander te begrijpen in het licht van de theoretische modellen die in hoofdstuk 2 besproken zijn.

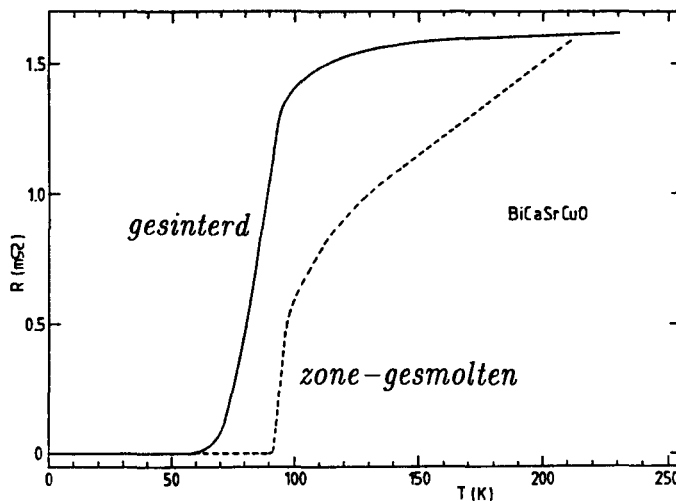
### §4.2 : Gesinterde en zone-gesmolten BiCaSrCuO preparaten

Alle preparaten waaraan gemeten is, zijn in onze eigen vakgroep gemaakt. Men gaat uit van een mengsel bestaande uit  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{Sr}(\text{OH})_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$  en  $\text{CuO}$  die een vaste-stof reactie aangaan. Deze geschiedt na grondig mengen en voorverhitten op  $700^\circ\text{C}$  gedurende ongeveer 3 uur. Vervolgens wordt het poeder tot pillen geperst bij een druk van  $\frac{1}{2}$  kbar. Tenslotte werden de pillen 50 uur verwarmd op  $870^\circ\text{C}$  in een atmosfeer van zuurstof en gequenched in vloeibare stikstof. De op deze manier verkregen preparaten hadden een samenstelling  $\text{BiCaSrCu}_2\text{O}_x$  (1112) en  $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$  (2122).

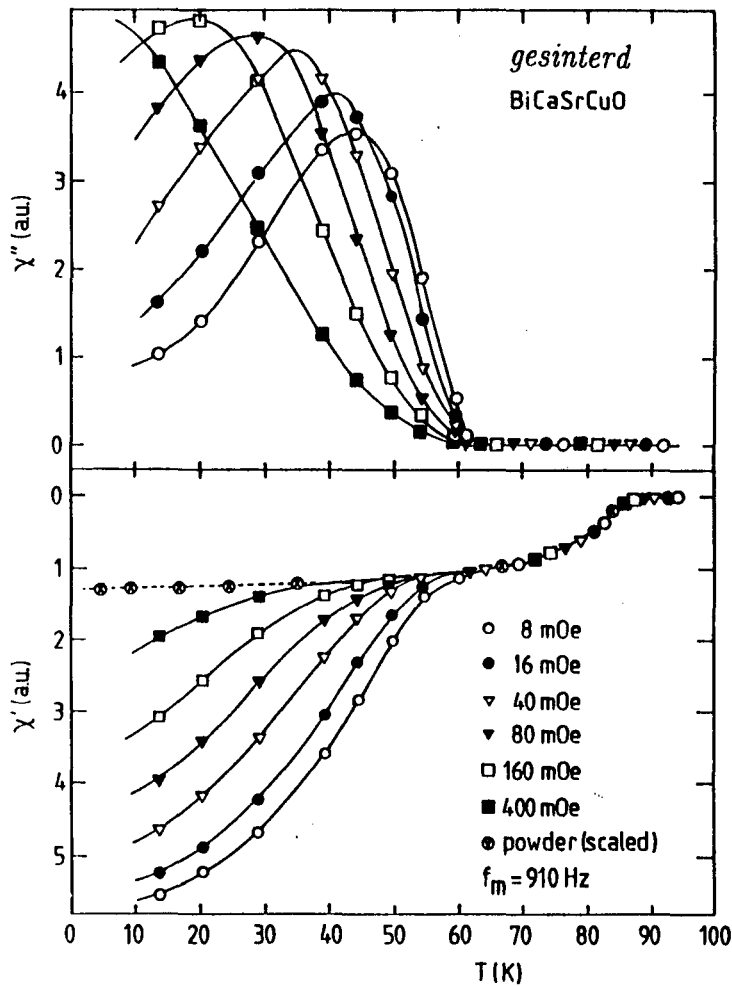
Het preparaat met de samenstelling (2122) is daarna onderworpen aan een zone-smeltbehandeling met behulp van intensief infra-rood licht, iets wat in het YBaCuO systeem niet mogelijk is. Dit zone-smelten gebeurde met een snelheid van ongeveer 3 cm/h. Omdat na een dergelijke behandeling het preparaat geen supergeleidende eigenschappen boven  $T=77\text{ K}$  bleek te bezitten, werd het nabehandeld door het preparaat te verhitten tot  $860^\circ\text{C}$  in een omgeving van stromende zuurstof. Op deze manier kreeg het zijn supergeleidende eigenschappen boven  $T=77\text{ K}$  terug. Het resultaat van het zone-smelten is nu dat een veel compacter preparaat ( $\rho = 5.4\text{ g/cm}^3$ ) is verkregen dan het gesinterde preparaat ( $\rho = 2.1\text{ g/cm}^3$ ), hetgeen invloed zal blijken te hebben op de granulaire eigenschappen van het BiCaSrCuO materiaal. Röntgenspectra tonen aan dat zowel het gesinterde (1112) als het zone-gesmolten (2122) preparaat hoofdzakelijk bestaan

uit de  $T_c = 90$  K fase. Een uitgebreide en systematische beschrijving van de vervaardiging en karakterisering van BiCaSrCuO preparaten wordt gegeven in [KRU 90].

Figuur 4.1 toont de weerstand als functie van de temperatuur voor beide preparaten. De weerstand werd gemeten met behulp van een standaard 4-puntsmeting met meetstroom  $i \leq 1$  mA. Het zone-gesmolten preparaat laat een vrij scherpe overgang zien. De temperatuur waarbij de weerstand nul wordt, is ongeveer 90 K. De onset temperatuur van het gesinterde preparaat is praktisch dezelfde als die van het zone-gesmolten preparaat, maar  $R=0 \Omega$  wordt pas bereikt bij  $T = 60$  K. Om nu na te gaan of dit verschil inderdaad het gevolg is van de verschillen in microstructuur en granulair gedrag, wordt in figuur 4.2 in eerste instantie de complexe susceptibiliteit van het gesinterde preparaat als functie van de temperatuur weergegeven. Gebruik is gemaakt van de meetopstelling zoals beschreven in hoofdstuk 3. We zien dat de in-fase component van de AC susceptibiliteit ( $\chi'$ ) twee overgangen vertoont, zoals al eerder gevonden in [EMM 88]. De overgang bij de hoogste temperatuur ( $T \approx 90$  K) is onafhankelijk van de amplitude  $H_m$  ( $8 \times 10^{-7} \text{ T} < \mu_0 H_m < 400 \times 10^{-7} \text{ T}$ ) van het AC modulatieveld, terwijl de andere juist een sterke afhankelijkheid heeft die begint bij ongeveer



**fig. 4.1 :** *Temperatuurafhankelijkheid van de weerstand van het gesinterde (ononderbroken curve) en het zone-gesmolten (onderbroken curve) BiCaSrCuO preparaat.*



**fig. 4.2 :** *Het reële- en imaginaire deel van de AC susceptibiliteit van het gesinterde preparaat bij verschillende amplituden van het AC-veld. De data van de poedermeting zijn geschaald bij  $T=70$  K.*

$T=60$  K. Deze resultaten passen kwalitatief goed in het granulaire model van Clem beschreven in §2.3. Immers, de veldafhankelijkheid van de lage-temperatuurovergang doet vermoeden dat deze geassocieerd kan worden met de koppeling van de korrels vanwege de veldafhankelijkheid van de Josephson juncties. Daar komt nog bij dat de koppeling vernietigd wordt door verpoederen, hetgeen duidelijk tot uiting komt in het verdwijnen van de lage-temperatuurovergang. De onset temperaturen (resp.  $T=90$  K en  $T=60$  K) stemmen ook overeen met de weerstandsmeting uit figuur 4.1. De overgang bij  $T=90$  K komt nu overeen met het supergeleidend worden van de individuele korrels, terwijl de weerstand pas nul wordt op het moment dat er een weerstandsloos percolatiepad gevormd kan worden.

Dit is het geval als de korrels gekoppeld worden bij  $T = 60$  K.

De sterkte van de koppeling kan afgeschat worden mbv de relaties (2.6) :

$E_J = (\hbar/2e) I_0$ , en (2.12) :  $I_0 = 1.57 \times 10^{-8} T_c^2 / (T_c - T_{cJ})$ , waarbij  $T_c$  nu correspondeert met de hoge-temperatuurovergang in  $\chi'$  en  $T_{cJ}$ , de temperatuur waarbij de korrels door fase-slip ontkoppeld raken, met de lage-temperatuurovergang. Invullen van de juiste waarden levert  $I_0(0) \approx 5 \mu\text{A}$ . Dit is een factor 100 kleiner dan bij het YBaCuO systeem [PET 88], hetgeen aangeeft dat de koppeling in dit preparaat veel zwakker is.

De uit-fase component van de AC susceptibiliteit  $\chi''$  vertoont slechts één piek, die gepaard gaat met de lage-temperatuurovergang van  $\chi'$ . Het granulaire model van Clem echter voorspelt twee pieken : één nabij  $T_c$ , die geassocieerd kan worden met de kritische stroomdichtheid  $j_{cg}$  in de korrels en één bij een lagere temperatuur, die correspondeert met de kritische stroomdichtheid in het intergranulaire materiaal  $j_{cJ}$ . Als we mogen aannemen dat deze (intergranulaire) piek veroorzaakt wordt door pinning van intergranulaire vortices, dan wordt zijn maximum bereikt als  $x_J = H_m / j_{cJ}(H_0, T)R \approx 1$ , waar  $H_0$  een mogelijk DC-veld is en  $R$  de karakteristieke afmeting van het critical-state profiel. In onze experimenten geldt  $\mu_0 H_0 = 0$  T. In figuur 4.3 wordt  $j_{cJ}$  als functie van de temperatuur weergegeven. We vinden een logarithmische temperatuurafhankelijkheid en extrapolatie naar  $T=0$  K levert  $j_{cJ}(0,0) \approx 7 \times 10^4 \text{ Am}^{-2}$ . Combineren we dit met de gevonden waarde voor de maximale Josephsonstroom  $I_0$ , dan krijgen we voor de typische korrelconnectie dimensie  $a_0 \approx 8 \mu\text{m}$ . Vergelijken met de gemiddelde korrelgrootte ( $R_g \leq 10 \mu\text{m}$ ) zoals die is afgeschat aan de hand van SEM opnamen, lijkt dit een redelijke overeenstemming te geven.

Het feit dat we slechts één piek in  $\chi''$  zien, mogelijk corresponderend met de verliezen veroorzaakt door pinning van intergranulaire vortices, kan wellicht verklaard worden doordat  $R_g \leq \lambda_g$ , de penetratiediepte van de korrels. In dit geval wordt de hoogte van de piek in  $\chi''$  volgens het model van Clem namelijk sterk onderdrukt.

Tot slot van deze paragraaf wordt in figuur 4.4 het resultaat van de meting van de AC susceptibiliteit aan het zone-gesmolten preparaat getoond. We zien een scherpe overgang in  $\chi'$  nabij  $T_c$  (ongeveer 90 K), die nauwelijks afhankelijk is van de amplitude van het aangelegde AC-veld. Het imaginaire gedeelte  $\chi''$  vertoont een



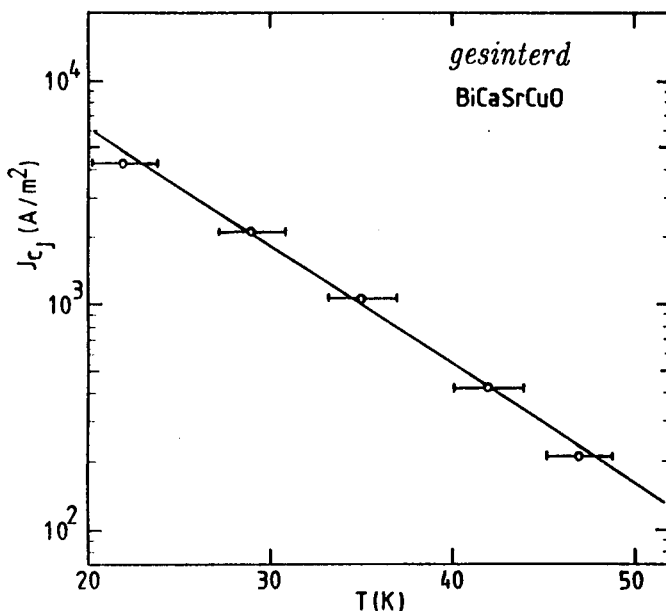


fig. 4.3 : *Temperatuurafhankelijkheid van de intergranulaire kritische stroomdichtheid  $j_{cJ}$  voor het gesinterde preparaat.*

piek bij een temperatuur die net iets lager is dan  $T_c$ . Ook de positie van het maximum van deze piek is slechts weinig afhankelijk van de amplitude van het AC-veld. Dit gedrag duidt erop dat de granulaire samenstelling van het zone-gesmolten preparaat heel anders is dan dat van het gesinterde sample.  $T_{cJ}$ , de temperatuur waarboven de korrels door thermisch geactiveerde faseslip ontkoppeld raken, ligt nu net onder  $T_c$ . Blijkbaar zorgt het zone-smeltproces voor een veel sterkere koppeling tussen de korrels. Verpoederen laat ook hier de piek in het  $\chi''$ -signaal verdwijnen. Het feit dat er slechts een kleine afhankelijkheid van de amplitude van het modulatieveld bestaat, duidt op een sterke temperatuurafhankelijkheid van  $j_{cJ}$ , zoals blijkt uit de relatie (2.21b) :  $x_J = H_m / j_{cJ}(0, T) R \approx 1$ . In [EMM 89] worden ook nog magnetisatiemetingen aan deze preparaten (gesinterd en zone-gesmolten) gepresenteerd.

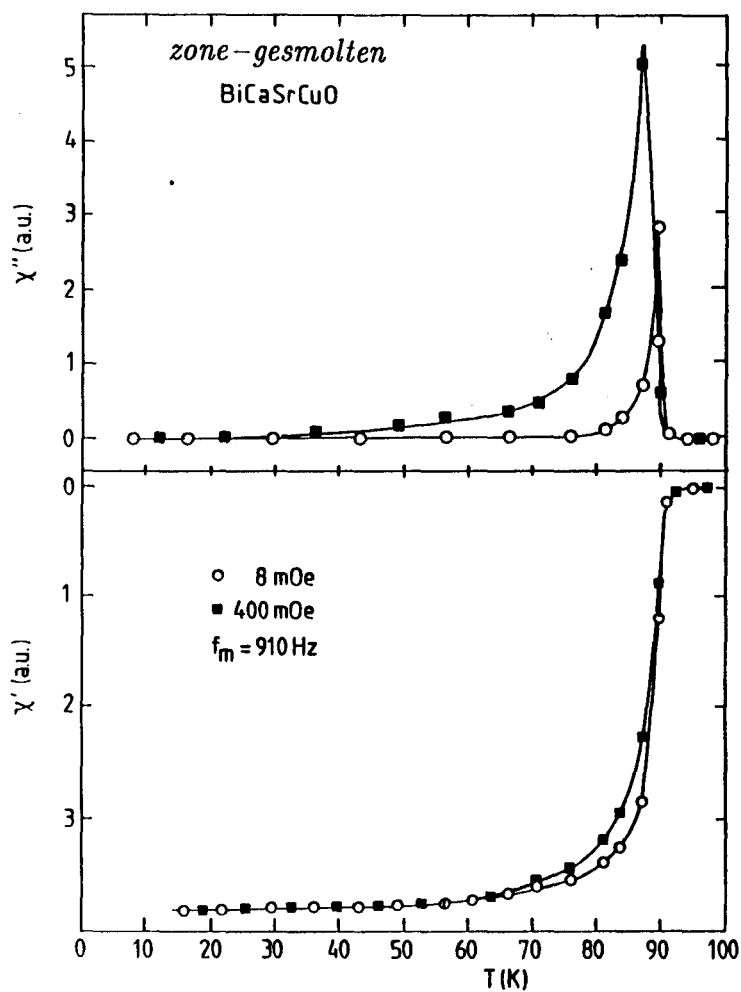


fig. 4.4 : *Het reële- en imaginaire deel van de AC susceptibiliteit van het zone-gesmolten preparaat bij verschillende amplituden van het AC-veld.*

§4.3 : Het onder hoge druk geperste en gesinterde BiCaSrCuO preparaat

In deze paragraaf komen weerstands- en dynamische  $\chi$  metingen van een onder hoge druk geperst en gesinterd  $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$  preparaat aan de orde. Het preparaat is onder dezelfde condities als beschreven in §4.2 vervaardigd, met dit verschil dat een tien maal zo hoge druk ( $p= 5 \text{ kbar}$ ) is gebruikt. Hierdoor wordt de granulaire samenstelling natuurlijk ook anders.

Figuur 4.5 laat de weerstand  $R$  als functie van de temperatuur  $T$  zien. De overgang naar  $R= 0 \Omega$  geschiedt grofweg in twee fasen. Dit gegeven kan, bij het ontbreken van een extern aangelegd DC magnetisch veld, geassocieerd worden met granulair gedrag [PAT 79]. De temperatuur  $T_{\text{CJ}}$  waarbij  $R= 0 \Omega$  wordt en de korrels gekoppeld raken, bedraagt  $76 \text{ K}$ , ongeveer  $16 \text{ K}$  hoger dan bij het gesinterde preparaat dat onder normale druk geperst was (zie §4.2). Dat we weer te maken hebben met granulair gedrag blijkt ook uit de meting van de AC susceptibiliteit. In figuur 4.6 zijn de in-fase component  $\chi'$  en de uit-fase component  $\chi''$  weergegeven in afwezigheid van een extern DC magnetisch veld. De in-fase component vertoont twee overgangen. De lage temperatuurovergang, is opnieuw afhankelijk van de amplitude van het AC modulatieveld en representeert de koppeling van de korrels. De hieruit afgeleide  $T_{\text{CJ}}= 73 \text{ K}$  sluit redelijk aan bij de temperatuur waarbij de weerstand nul wordt. Tevens zien we dat indien we het preparaat verpoederen, en zo koppeling tussen de korrels verbreken, zowel de AC veldafhankelijke stap in  $\chi'$  als het  $\chi''$ -signaal verdwijnen. Op dezelfde manier als in de vorige paragraaf kunnen we

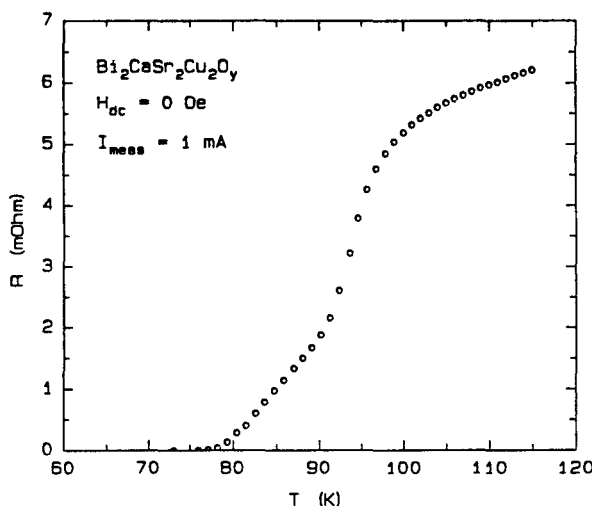


fig. 4.5 : *Temperatuurafhankelijkheid van de weerstand van  $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$ .*

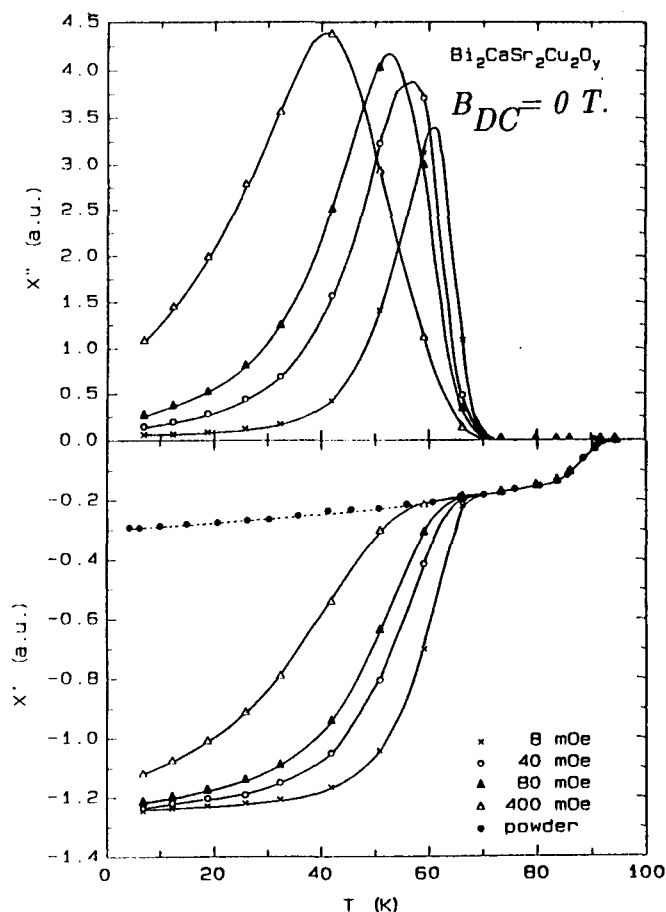


fig. 4.6 : *Het reële- en imaginaire deel van de AC susceptibiliteit van  $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$  bij  $B_{DC} = 0 \text{ T.}$*

$j_{cJ}(T)$  bepalen uit de positie van de maxima van  $\chi''$  als functie van de amplitude van het AC-veld. Het resultaat is in figuur 4.7 weergegeven. Extrapolatie naar  $T = 0 \text{ K}$  levert  $j_{cJ}(0) \approx 10^6 \text{ Am}^{-2}$ . Combinatie met de maximale Josephsonstroom  $I_0(0) \approx 7.5 \mu\text{A}$ , verkregen uit het verschil tussen  $T_c$  en  $T_{cJ}$  (vgl. 2.12), leidt vervolgens tot een typische korreldimensie van  $2.5 \mu\text{m}$ . Dit lijkt weer redelijk in vergelijking met de gemiddelde korrelgrootte van ongeveer  $5 \mu\text{m}$ , die afgeleid is van een SEM opname van het preparaat. In figuur 4.8 is zo'n SEM opname afgedrukt. Een soortgelijke interpretatie geeft ook voor YBaCuO redelijke resultaten [KÜP 88], hoewel daar de verschillen in  $T_c$  en  $T_{cJ}$  kleiner zijn en de AC veldafhankelijkheid geringer.

Het gekoppelde kringmodel van Ishida zoals beschreven in §2.5, zegt dat in het geval de koppeling tussen de korrels veroorzaakt wordt door tunneljuncties, de vorm van het  $\chi'(T)$ - en  $\chi''(T)$ -signaal symmetrisch t.o.v. het middelpunt is. Uit figuur 4.6 blijkt dat dit niet het geval is en dat de waargenomen asymmetrie naar de kant van  $T_{cJ}$  helt. Dit is in tegenstelling tot het in [ISH 81] genoemde geval van een micro-bridge koppeling, waarbij de asymmetrie door de vorm van  $j_{cJ}(T)$  juist naar

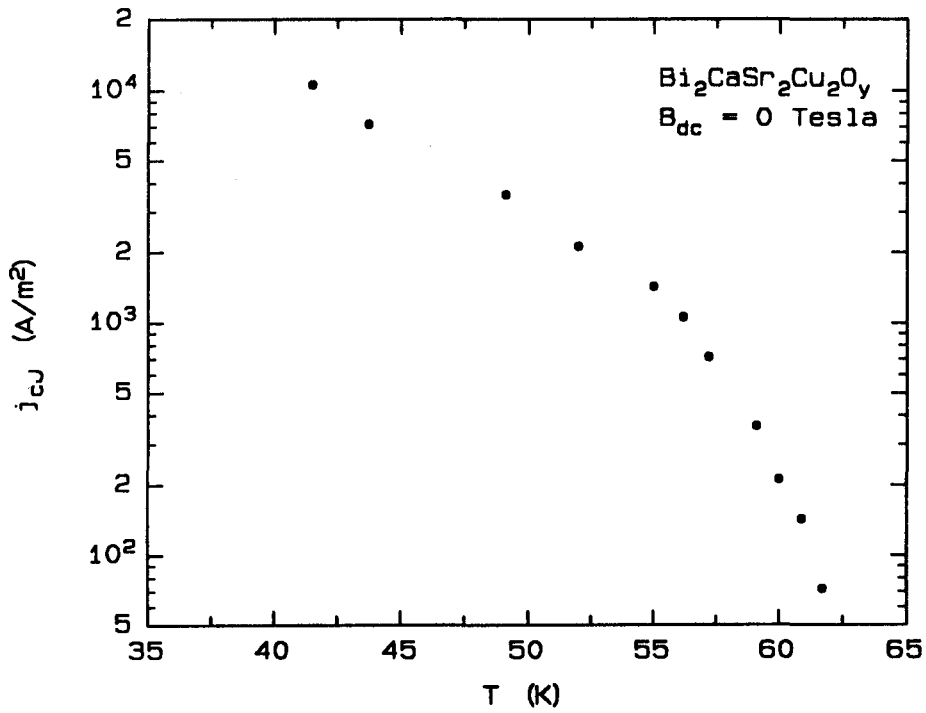


fig. 4.7 : *Temperatuurafhankelijkheid van de intergranulaire kritische stroomdichtheid  $j_{cJ}$  voor  $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$ .*



fig. 4.8 : *SEM-opname van  $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$ .*

de kant van volledige Meissnerafscherming helt. Omdat de verbreding van  $\chi'$  naar perfect diamagnetisme en de  $\chi''$ -piek met stijgende amplitude  $H_m$  van het modulatieveld duidelijk samenhangen, is in figuur 4.9  $\chi'$  tegen  $\chi''$  uitgezet als functie van  $H_m$ . De verkregen curve is asymmetrisch en het maximum stijgt bij lage velden met  $H_m$ . Bij wat hogere waarden voor  $H_m$  ( $H_m > 100$  mOe) lijken de krommen te gaan samenvallen tot een gemeenschappelijke curve. Ishida's model voorspelt echter dat de hoogte van het maximum onafhankelijk is van  $H_m$ . Deze discrepantie wordt meer gevonden (bv [GAR 87] en [ODA 87]) en kan wellicht worden toegeschreven aan afrondingen van de werkelijke B-H hystereselus, die de oppervlakte kleiner maakt dan die in het model wordt voorgesteld. De

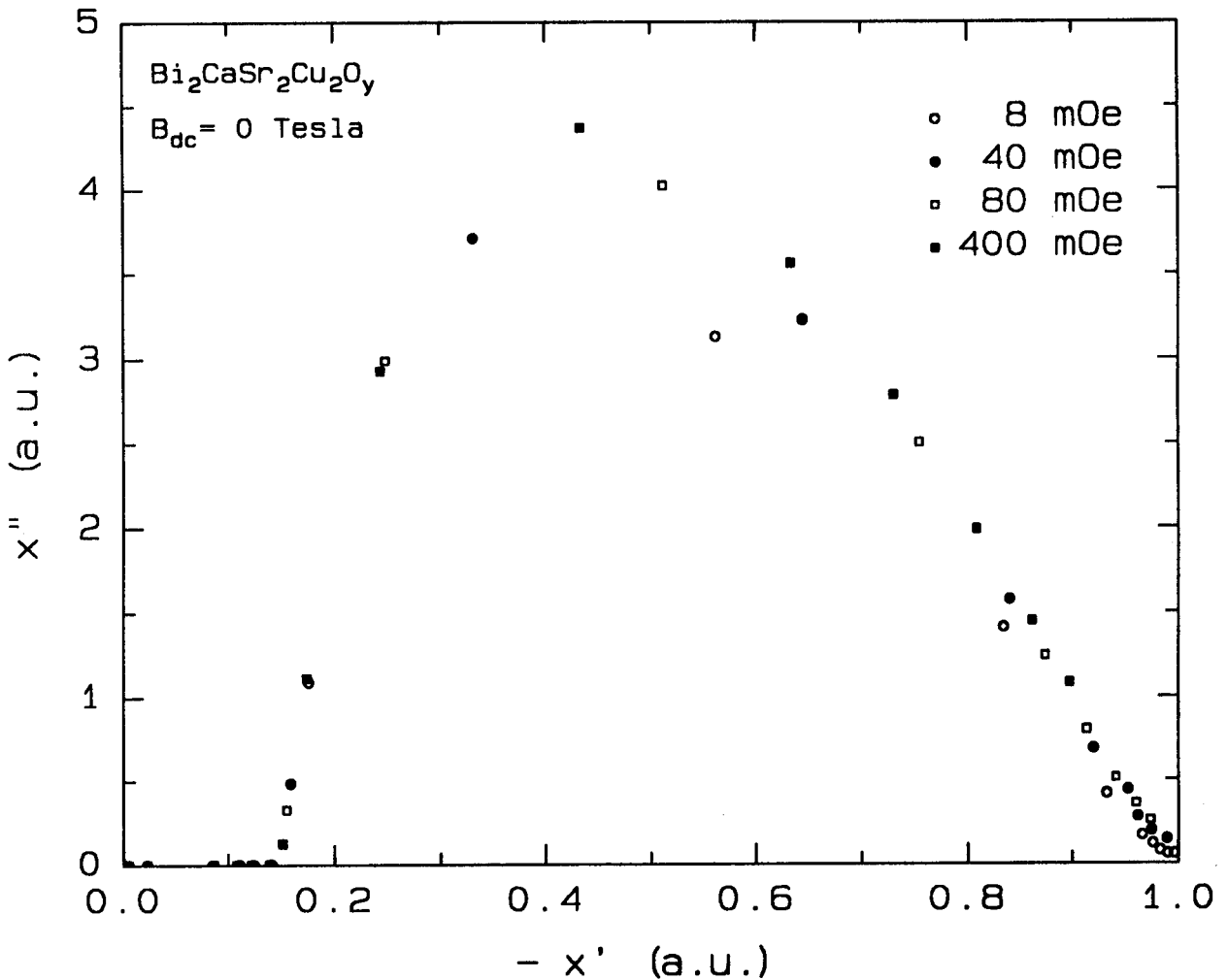


fig. 4.9 :  $\chi''$  tegen  $\chi'$  als functie van de amplitude  $h_0$  van het AC-modulatieveld voor  $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$  bij  $B_{DC} = 0$  T.

samenvallende curve voor hogere waarden van  $H_m$  heeft dan te maken met het feit dat er beter voldaan is aan de voorwaarde  $H_m \gg \Phi_0/\mu_0 A$  ( $A$  = oppervlakte gekoppelde kring), verondersteld in het model van Ishida. Meting van hogere harmonischen zoals voorgesteld in [ISH 81] kunnen meer uitsluitel geven over de juistheid van deze interpretatie.

Op grond van het critical-state model leiden Gömöry en Lobotka [GÖM 88] af dat  $\chi''$  maximaal wordt als  $\chi' = -\frac{1}{3}$ . Zij vinden dit ook experimenteel en voor ons preparaat geldt dit eveneens, mits we dit beeld toepassen op de lage temperatuurovergang (zie figuur 4.9). Kennelijk is het niet onredelijk bij de beschrijving van de flux in het intergranulaire materiaal uit te gaan van het critical-state idee.

Als we een DC-veld parallel aan het AC modulatieveld aanleggen, zien we een tweede piek in het  $\chi''$ -signaal verschijnen. In figuur 4.10 zijn deze meetresultaten voor verschillende DC-velden weergegeven. Zo'n tweede piek, corresponderend met intragranulaire verliezen, is ook in één-kristallen van YBaCuO en BiCaSrCuO ([WOR 88] en [YES 89]) waargenomen en wordt verklaard met het beeld dat past bij flux-kruip [MAL 88]. De veldafhankelijkheid van  $T_{irr}$ , de temperatuur waarbij  $\chi''$  maximaal is, wordt in dit model gegeven door  $1-t \sim (H_a)^q$  ( $t = T_{irr}/T_c$ ). Afhankelijk van de exacte temperatuur- en veldafhankelijkheid van de pinpotentiaal  $U$ , geldt  $q = 2/3$  of  $q = 3/4$ . Uit figuur 4.11, waarin  $t$  is uitgezet tegen het aangelegde veld, blijkt dat voor ons preparaat  $q = 1/3$ .

De frequentieafhankelijkheid van  $T_{irr}$  is weergegeven in figuur 4.12.  $T_{irr}$  werd bepaald uit  $\chi''$  bij  $H_{DC} = 500$  Oe. De grote frequentieafhankelijkheid komt overeen met resultaten van Yeshurun et al. [YES 89] voor BiCaSrCuO één-kristallen. Ook blijkt dat deze hoge-temperatuurpiek in  $\chi''$  binnen de meetnauwkeurigheid niet afhangt van de grootte van  $h_0$ , de amplitude van het wisselveld. In §2.4 is besproken dat indien de verliezen veroorzaakt worden door pinning (bulk- en oppervlaktepinning),  $\chi''$  een  $h_0$ -afhankelijkheid zal bezitten (zie voor een overzicht tabel 2.1). De AC-verliezen zullen in die situatie daarentegen onafhankelijk zijn van de frequentie. Bij ideale flux-flow verliezen zal er geen  $h_0$ -afhankelijkheid zijn, terwijl de frequentie wel van invloed is. Men is dus geneigd te concluderen dat voor de hoge-temperatuurovergang eerder flux-flow voor de verliezen zorgt dan pinning. Ook het TAFF-model (§2.6) voorspelt dat de verliezen onafhankelijk zullen zijn

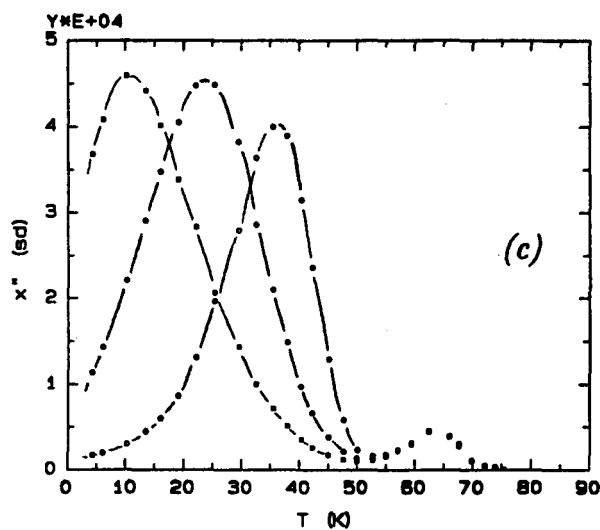
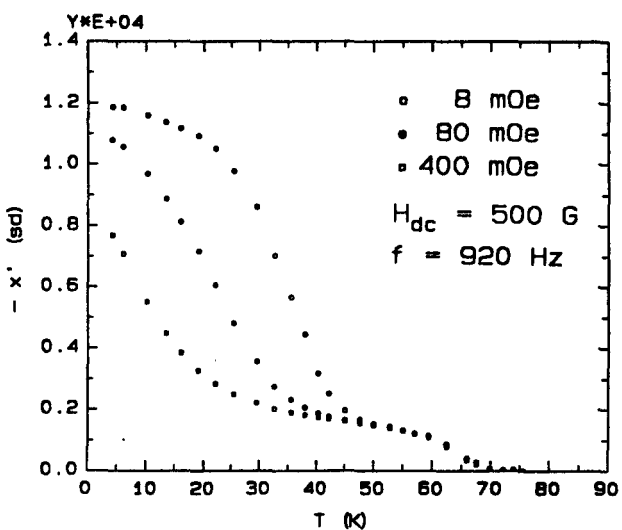
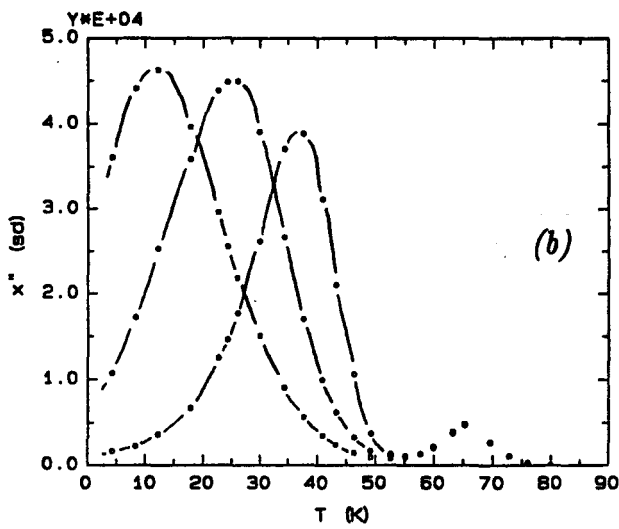
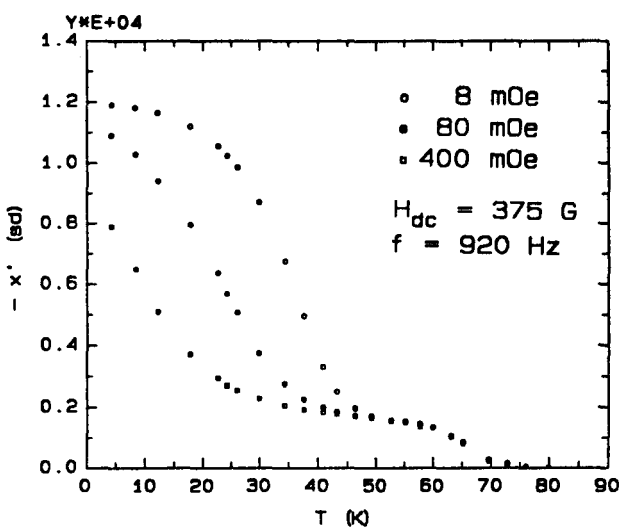
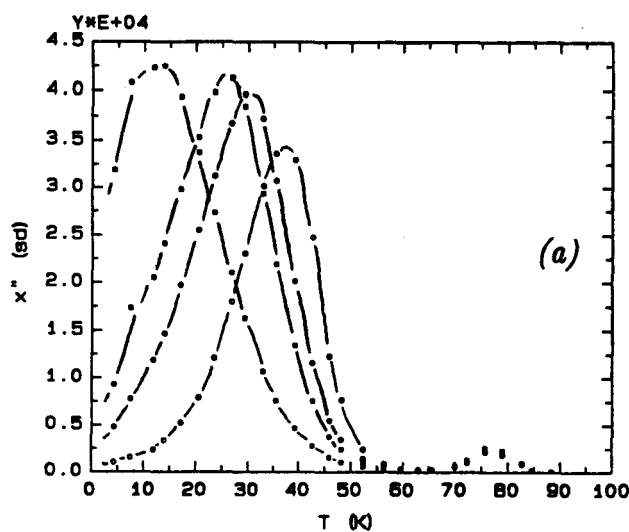
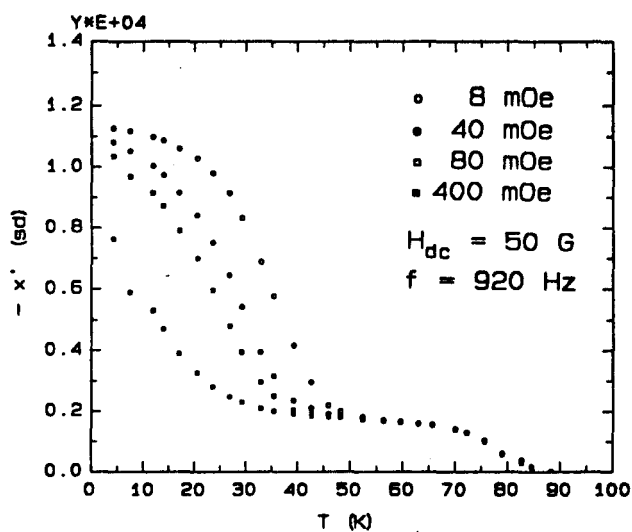


fig. 4.10 : Het reële- en imaginaire deel van de AC susceptibiliteit van  $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$  bij (a)  $H_{DC} = 50 \text{ Gauss}$ , (b)  $H_{DC} = 375 \text{ Gauss}$  en (c)  $H_{DC} = 500 \text{ Gauss}$ .



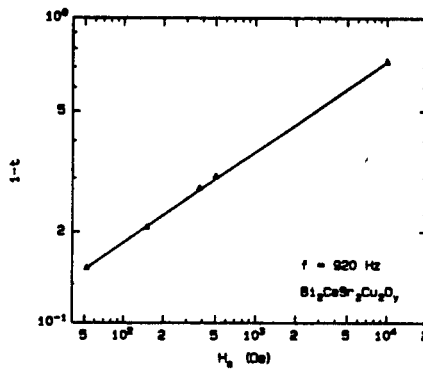


fig. 4.11 : *DC-veldafhankelijkheid van de irreversibiliteitslijn, zoals bepaald uit  $\chi''_{ac}$  bij  $f = 920$  Hz.*

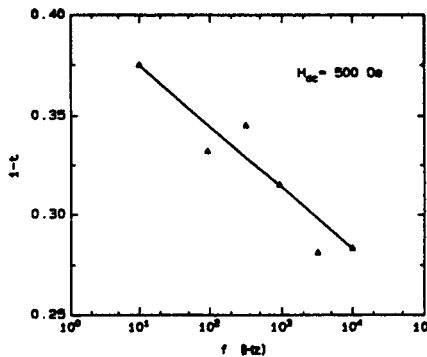


fig. 4.12 : *Frequentieafhankelijkheid van de irreversibiliteitslijn, zoals bepaald uit  $\chi''_{ac}$  bij  $H_{DC} = 500$  Oe.*

van de amplitude van het AC-veld, maar daarentegen wel afhangen van de frequentie. De frequentieafhankelijkheid van  $T_{irr}$  zal alleen logaritmisch zijn als  $U \sim (1-t)$ , hetgeen blijkt uit vgl. 2.107. De analogie met flux-flow is reeds in §2.6 aangestipt. Nog een ondersteuning voor de conclusie dat nabij  $T_c$  het verliesmechanisme thermisch geactiveerde flux-flow is, zijn de lage activeringsenergieën, die berekend kunnen worden uit de frequentieafhankelijkheid van  $T_{irr}$  [MAL 88]. Typische waarden in ons geval zijn  $U \approx 8 \times 10^{-4}$  eV. Nuttige kwantitatieve informatie kan wellicht verkregen worden door de formules 2.53 en 2.54 voor pinning-vrije flux-flow verliezen te 'vertalen' en te plaatsen binnen het TAFF-model. Plaatjes zoals in figuur 2.14 kunnen dan met het experiment vergeleken worden.

## HOOFDSTUK 5 : CONCLUSIES EN AANBEVELINGEN

Onze BiCaSrCuO preparaten vertonen duidelijk granulair gedrag. Voor het 'gewoon' gesinterd (1112) preparaat zijn in  $\chi'$  twee overgangen te zien, die duiden op koppeling tussen supergeleidende korrels. Dit is kwalitatief in goede overeenstemming met het model van Clem (§2.3). Weerstandsmetingen sluiten hierbij aan. Het zone-gesmolten (2122) preparaat is veel dichter en er is daardoor wellicht een betere koppeling tussen de korrels mogelijk. Er wordt in dit geval ook maar één overgang in  $\chi'$  waargenomen. Poedermetingen laten de lage-temperatuur overgang, mogelijk dus corresponderend met de koppeling tussen de korrels, verdwijnen.

Het andere gesinterde (2122) preparaat, dat onder een 10 maal zo hoge druk geperst is, vertoont kwalitatief een gelijk gedrag als het (1112) preparaat. Alleen de  $T_{cJ}$  van 76 K, 16 K hoger dan (1112), duidt op een betere koppeling. De met het model van Clem (§2.3) berekende kritische stroomdichtheid  $j_{cJ}(T=0 \text{ K}) \approx 10^6 \text{ Am}^{-2}$ , is dan ook groter dan die van (1112) ( $j_{cJ}(T=0 \text{ K}) \approx 7 \times 10^4 \text{ Am}^{-2}$ ). Verpoederen laat ook hier de lage-temperatuur overgang verdwijnen en de weerstandsmetingen geven aan dat  $R=0 \Omega$  bij  $T \approx T_{cJ}$ .

Het aanleggen van een statisch DC-veld geeft in  $\chi''$  een tweede piek nabij  $T_c$  te zien. Deze piek is binnen de meetnauwkeurigheid onafhankelijk van de amplitude  $h_{ac}$  van het wisselveld, maar hangt daarentegen juist sterk af van de frequentie  $\omega$ . Dit past goed in het beeld dat de intragranulaire verliezen veroorzaakt worden door thermisch geactiveerde flux-flow (TAFF), zoals beschreven in §2.6. Deze theorie heeft grote overeenkomsten met ideale flux-flow verliezen in type-II supergeleiders (§2.4.2). Het verdient de aanbeveling de in die theorie gegeven uitdrukkingen voor  $\chi'$  en  $\chi''$  te vertalen naar de TAFF-situatie, om zo meer kwantitatieve informatie te verkrijgen over de vraag welke verliesmechanismen nu werkelijk een rol spelen.

## HOOFDSTUK 6 : LITERATUUR

- [ABR 67] Handbook of Mathematical Functions, Ed. by M. Abramowitz en I.A. Stegun, U.S. Natl. Bur. Stand. Appl. Math. Series no. 55 (U.S. GPO, Washington, D.C., 1967), p.382.
- [AMB 63] V. Ambegaokar en A. Baratoff, Phys. Rev. Lett. 10, 486 (1963); erratum 11, 104 (1963).
- [AND 62] P.W. Anderson, Phys. Rev. Lett. 9, 309 (1962).
- [BEA 62] C.P. Bean, Phys. Rev. Lett. 8, 250 (1962).
- [BEA 64] C.P. Bean, Rev. Mod. Phys. 36, 31 (1964).
- [BED 86] J.G. Bednorz en K.A. Müller, Z. Phys. B 64, 189 (1986).
- [BER 89] J. vd Berg, proefschrift R.U. Leiden (1989).
- [BRE 89] E. Brentjens, afstudeerverslag T.U.E., fac. Techn. Natuurk., vakgroep Vaste Stof (1989).
- [CAM 72] A.M. Campbell en J.E. Evetts, Adv. Phys. 21, 199 (1972).
- [CLE 74] J.R. Clem, Low Temperature Physics—LT 13, Ed. by K.D. Timmerhaus et.al. (Plenum, New York, 1974), Vol. 3, p.102.
- [CLE 76] J.R. Clem, H.R. Kerchner en S.T. Sekula, Phys. Rev. B 14, 1893 (1976).
- [CLE 79] J.R. Clem, "AC Losses in Type-II Superconductors", Techn. Report no. IS-M 280, Ames Laboratory, Ames, Iowa.
- [CLE 79b] J.R. Clem, J. Appl. Phys. 50, 3518 (1979).
- [CLE 87] J.R. Clem en V.G. Kogan, Jpn. J. Appl. Phys. 26 (Suppl. 26-3), 1161 (1987).

- [CLE 87b] J.R. Clem, B. Bumble, S.I. Raider, W.J. Gallagher en Y.C. Shih, *Phys. Rev. B* 35, 6637 (1987).
- [CLE 88] J.R. Clem, *Physica C* 50, 153 (1988).
- [EKI 75] J.W. Ekin, *Phys. Rev. B* 12, 2676 (1975).
- [EMM 88] J.H.P.M. Emmen, W. de Jonge, C. vd Steen, H. Dalderop, P. Geppaart en V. Brabers, *Sol. State Comm.* 66, 1089 (1988).
- [EMM 89] J.H.P.M. Emmen, V. Brabers, W. de Jonge, C. vd Steen, H. Dalderop, P. Geppaart en K. Kopinga, *J. Less-Common Met.* 151, 63 (1989).
- [GAR 87] J. García, C. Rillo, F. Lera, J. Bartolomé, R. Navarro, D.H.A. Blank en J. Flokstra, *J. Mag. & Magn. Mat.* 69, L225 (1987).
- [GEN 66] P.G. De Gennes, *Superconductivity of metals and alloys* (W.A. Benjamin inc., New York, 1966), p.55 e.v..
- [GIN 50] V.L. Ginzburg en L.D. Landau, *J.E.T.P.* 20, 1064 (1950).
- [GIO 78] B. Giovannini en L. Weiss, *Sol. State Comm.* 27, 1005 (1978).
- [GOR 59] L.P. Gor'kov, *J.E.T.P.* 9, 1364 (1959); 10, 593 en 998 (1960).
- [GÖM 88] F. Gömöry en P. Lobotka, *Sol. State Comm.* 66, 645 (1988).
- [HU 72] C.R. Hu, *Phys. Rev. B* 6, 1756 (1972).
- [ISH 81] T. Ishida en H. Mazaki, *J. Appl. Phys.* 52, 6798 (1981).
- [JAC 62] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (Wiley, New York, 1962), p.197.
- [KAM 11] H. Kamerlingh Onnes, *Akad. v. Wetensch. (Amsterdam)* 14, 113 en 818 (1911).

- [KES 89] P.H. Kes, J. Aarts, J. vd Berg, C.J. vd Beek en J.A. Mydosh, *Supercond. Sci. Techn.* 1, 242 (1989).
- [KIM 76] Y.B. Kim en M.J. Stephen, *Superconductivity* (Marcel Dekker, New York, 1969), vol. 2, hfdst. 19, pp.1107–1165.
- [KLE 80] R.A. Klemm en J.R. Clem, *Phys. Rev. B* 21, 1868 (1980).
- [KOG 81] V.G. Kogan en J.R. Clem, *Phys. Rev. B* 24, 2497 en 1572 (1981).
- [KRU 90] W. de Kruijf, te verschijnen afstudeerverslag T.U.E., fac. Techn. Natuurk., vakgroep Vaste Stof (1990).
- [KÜP 88] H. Küpfer, I. Apfelstedt, R. Flükiger, C. Keller, R. Meier-Hirmer, B. Runtsch, A. Turowski, U. Wiech en T. Wolf, *Cryogenics* 28, 650 (1988).
- [LOB 83] C.J. Lobb, D.W. Abraham en M. Tinkham, *Phys. Rev. B* 27, 150 (1983).
- [MAL 88] A.P. Malozemoff, T.K. Worthington, Y. Yeshurun, F. Holtzberg en P.H. Kes, *Phys. Rev. B* 38, 7203 (1988).
- [ODA 87] Y. Oda, I. Nakada, T. Kohara en K. Asayama, *Jpn. J. Appl. Phys.* 26, 608 (1987).
- [PAR 88] S.S.P. Parkin, V.Y. Lee, E.M. Engler, A.I. Nazzal, T.C. Huang, G. Gorman, R. Savoy en R. Beijers, *Phys. Rev. Lett.* 60, 2539 (1988).
- [PAT 79] B.R. Patton, W. Lamb en D. Stroud, *Theory of Superconductivity in Granular Composites*, AIP Conference Proceedings no. 58, Ed. by D.U. Gubser et.al., New York (1979), p.13.
- [PET 88] R.L. Peterson en J.W. Ekin, *Phys. Rev. B* 37, 9848 (1988).
- [POL 89] F. vd Pol, afstudeerverslag T.U.E., fac. Techn. Natuurk., vakgroep Vaste Stof (1989).

- [ROS 78] A.C. Rose-Innes en E.H. Rhoderick, *Introduction to Superconductivity* (Pergamon Press, New York, 1978), p.170.
- [SHI 84] W.Y. Shih, C. Ebner en D. Stroud, *Phys. Rev. B* 30, 134 (1984).
- [TIN 75] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity* (McGraw-Hill, New York, 1975), p.199.
- [TIN 75b] zie [TIN 75], pp.104 e.v..
- [TIN 75c] zie [TIN 75], pp.144 e.v..
- [WOR 88] T.K. Worthington, Y. Yeshurun, A.P. Malozemoff, R.M. Yandrofski, F.H. Holtzberg en T.R. Dinger, *J. Physique C* 8, 2093 (1988).
- [WU 87] M.K. Wu, J.R. Ashburn, C.J. Torng, P.H. Hor, R.L. Meng, L. Gao, Z.J. Huang, Q. Wang en C.W. Chu, *Phys. Rev. Lett.* 58, 908 (1987).
- [YES 88] Y. Yeshurun en A.P. Malozemoff, *Phys. Rev. Lett.* 60, 2202 (1988).
- [YES 89] Y. Yeshurun, A.P. Malozemoff, T.K. Worthington, R.M. Yandrofski, L. Krusin-Elbaum, F.H. Holtzberg, T.R. Dinger en G.V. Chandrashekhar, *Cryogenics* 29, 258 (1989).

## NAWOORD

Dit nawoord zou ik willen reserveren voor enkele opmerkingen van niet-fysische aard. In sommige wetenschappelijke tijdschriften worden artikels afgedrukt met soms meer dan 200 auteurs, die allemaal bij het betreffende onderzoek betrokken zijn. Eigenlijk geldt dit ook voor dit afstudeerverslag. Velen hebben mij, direct of indirect, bijgestaan in het voltooien van mijn studie en in mijn vorming tot ingenieur, waarvoor ik iedereen wil bedanken. Twee mensen echter, verdienen het speciaal genoemd te worden : \* Jack Emmen, wiens begeleiding nooit te wensen overliet, en \* Cees vd Steen, die o.a. alles weet van de dynamische susceptibiliteitsopstelling en bereid was een gedeelte van zijn kennis op mij over te dragen.

Tot slot wens ik de toekomstige bewoners van sporthuis M.O. veel plezier en succes toe in 'onze' gezellige vakgroep. Ik hoop dat de gedaanteverwisseling van NL 02.06 tot sporthuis M.O. intact zal blijven om zo een inspiratiebron te kunnen zijn enkele tradities van 't huis voort te zetten.

*Staszek, 14 december 1989.*