

A kutatás eredményei

Tartalom

1. A kutatás célja	2
2. Disszipáció nagy áramsűrűségeknél magashőmérsékleti szupravezetőkben	3
3. Kvázirészecske gerjesztések nemkonvencionális szupravezetőkben.....	4
4. Lokális rend és konfigurációs fluktuációk a Na ₂ CsC ₆₀ fullerén szupravezetőben.....	5
Hivatkozások	5

1. A kutatás célja

A 20 évvel ezelőtt felfedezett rézoxid alapú magashőmérsékleti szupravezetők (MHSZ) elsősorban az alábbi három területen hoztak lényeges újdonságot a szupravezetők fizikájában:

1. A szupravezető párképződés újszerű mechanizmusa.
2. A rendparaméternek a kristályrácsonál alacsonyabb szimmetriája.
3. A szupravezető örvények (vortexek) újszerű fázisdiagramja.

Az elmúlt húsz év páratlan erőfeszítései ellenére mindhárom területen maradtak alapvető megválaszolatlan kérdések. A jelen projekt, amely folytatása és kiterjesztése volt az MHSZ-ek örvényrendszerének tulajdonságait célzó korábbi (T0... számú) OTKA projektnek, mindhárom területet érintette. Célkitűzéseinket a munkatervben az alábbiakban összegeztük:

- a) A transzportmérésekben a minták és az elektródák jobb kontrollja,
- b) vizsgálataink kiterjesztése a szupravezetők egy nagyobb családjára,
- c) valamint a kvázirészecske gerjesztések tanulmányozására.

A megvalósítás során ezeket a célkitűzéseket követtük, noha részleteiben és hangsúlyaiban természetesen voltak eltérések a munkatervtől az időközben elért új eredmények függvényében.¹ A projekt szerteágazó kutatásait összefoglaló vezérelv a másodfajú szupravezetők, ezek közül is elsősorban az MHSZ szupravezetők disszipációs mechanizmusainak jobb megértése volt. Noha eredményeink alapkutatás jellegűek, a disszipáció természetesen meghatározó jelentőségű a gyakorlati alkalmazásokban.

A konvencionális másodfajú szupravezetőkben a disszipáció fő forrása a vortexek mozgása. Az MHSZ szupravezetőkben a kép lényegesen bonyolódik a réteges (közel kétdimenziós) elektronszerkezet következtében: megjelenik egy új disszipációs mechanizmus, amely a Cooper-párok rétegről rétegre való alagutazásával kapcsolatos. A két mechanizmus és kölcsönhatásuk jellemzésére végzett nagyáramú transzportméréseink eredményeit a 2. fejezetben ismertetjük.

Nagyfrekvencián a szupravezető kondenzátum induktív válasza következtében elektromos tér jelenik meg az anyagban és a véges hőmérsékleten mindig jelen levő kvázirészecske gerjesztések transzportja disszipációhoz vezet. Ezen gerjesztések spektruma az MHSZ-ekben lényegesen eltér a konvencionális szupravezetőkétől, mivel előbbieken a szupravezető rendparaméter nullává válik a Fermi-felület egyes pontjaiban. A kvázirészecske spektrumra vonatkozó elméleti valamint NMR-es kísérleti eredményeinket a 3. fejezetben írjuk le.

A C₆₀ alapú szupravezetők sajátos tulajdonsága, hogy magas hőmérsékleten a kristályos fázisban a molekulák szinte szabad forgó mozgást végeznek, amely mozgás alacsony hőmérsékleten „befagy.” Az alacsony hőmérsékleten kialakuló rend illetve rendezetlenség a molekulák orientációjában hatással van a szupravezető tulajdonságokra. A jelenség tanulmányozására kiváló eszköznek bizonyult az NMR. A C₆₀ alapú szupravezetőkön kapott NMR eredményeinket a 4. fejezetben ismertetjük.

¹ A „Kutatás adatai” kérdőíven úgy nyilatkozunk, hogy az elvégzett munka megfelel a munkatervben tervezettnek, ugyanis az eltéréseket nem tartjuk jelentősnek.

2. Disszipáció nagy áramsűrűségeknél magashőmérsékleti szupravezetőkben

A projekt egyik fő célkitűzése a nagy áramoknál megjelenő disszipáció vizsgálata volt a $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (BSCCO) magashőmérsékleti szupravezető egykristályain. A konvencionális másodfajú szupravezetőkben nagyon jól dokumentálták, hogy a disszipáció fő forrása az Abrikoszov-örvények mozgása. A vortexek magjában ugyanis lokalizált kvázi-részecskék vannak véges állapotsűrűséggel nulla energiánál és ezek a részecskék képesek átadni a szupravezető kondenzátum impulzusmomentumát a kristályrácsnak, ami disszipációhoz vezet.

Az MHSZ-ekben ezt a képet több tényező is bonyolítja. Egyrészt magas hőmérsékleten megolvad a vortex rács és itt tetszőlegesen kis áram hatására disszipáció jön létre a szabadon mozgó vortexek hatására. Alacsony hőmérsékleten alakul csak ki szilárd vortex fázis és véges küszöbáram a disszipációra. Másrészt az erős anizotrópia miatt a szomszédos vezető síkokban a vortexek szétszóródnak. Ilyenkor a síkokon belüli „palacsintavortexek” és a síkok közötti Josephson-csatolás egyaránt fontos szerepet játszik a disszipációban. Ebben a tartományban nagyon kevés eredmény áll rendelkezésre a szakirodalomban.

A szilárd vortexfázisban a disszipáció vizsgálatához nagy áramsűrűségekre van szükség, ezért továbbfejlesztettük nagyáramú impulzusüzemű mérőberendezésünket. 1 μs -ra csökkentettük a mérőimpulzusok hosszát a Joule-fűtés hatásának minimalizálására, ami lehetővé tett mintegy 1,2 A-es mérőáram használatát a tipikusan $3 \times 600 \mu\text{m}$ keresztmetszetű egykristályokon (a kristályok harmadik dimenziója tipikusan 1 mm). Érdekességként megjegyezzük, hogy a fejlesztés a digitális előfizetői telefonvonalakra (DSL) kifejlesztett technikán alapul.

Másik lényeges technikai fejlesztésünk a minták és kontaktusok geometriájának jobb kontrollálása volt. Kidolgoztunk egy eljárást BSCCO egykristályok felületén arany kontaktus kialakítására fotolitográfias technikával. A kristályok felületén ionmaratással alakítottunk ki struktúrát. A fejlesztés fő motivációja az a felismerés volt, hogy a mintán belüli áramelosztás jobb kontrollja nélkül nem vagyunk képesek következtetést levonni a tömbi tulajdonságokra.

Különböző kontaktuselrendezésű minták vizsgálatával [2] arra a következtetésre jutottunk, hogy az áram növelésével először a kontaktusok közelében alakul ki egy disszipatív tartomány amelynek mérete növekvő árammal nő. A minta felületének ionmarásos strukturálásával nyomon követtük, hogyan növekszik az árammal a disszipatív tartomány. Lokális áram-feszültség karakterisztikák feltételezésével numerikusan megoldottuk az áramelosztásra vonatkozó nemlineáris parciális differenciálegyenletet és a megoldást a mérési eredményekkel összevetve meghatároztuk a lokális küszöb-áramsűrűségeket. Azt találtuk, hogy az anyag igen erős anizotrópiája miatt az áram behatolását a szupravezetőbe nem a London-féle behatolási mélység korlátozza, hanem a szupravezető paraméterek anizotrópiája. Ez különösen igaz az általunk vizsgálatnál kisebb méretű mintákra, nevezetesen a polikristályos anyagok szemcséire is, amelyeknek fontos szerepük van a szupravezető kábelek készítésében.

Hasonló módszerekkel arra a következtetésre jutottunk [4,10], hogy a kritikus hőmérséklet közelében a rendszer a várakozásnak megfelelően jól leírható 3d vortexfolyadék feltételezésével. Megmutattuk, hogy a hőmérséklet csökkentésével a 3d vortexfolyadék 2d vortexfolyadékká alakul.

A BSCCO magashőmérsékletű szupravezető egykristályokon a nagy áramoknál fellépő disszipáció vizsgálatát megismételtük [18] egy olyan mintasoron, amelyben kémiai adalékolás eredményeként a vezetési elektron-koncentráció alacsonyabb volt a kritikus hőmérséklet szempontjából optimálisnál („aludópolt minták”). Ezeken a mintákon a disszipáció felléptének küszöbárama alacsonyabb volt az optimális dópolás mellett megfigyelnél és így

lehetőség nyílt a küszöbáramot mintegy három nagyságrenddel meghaladó áramok mellett is kísérleteket végezni. Ez az áram már elegendően nagynak bizonyult ahhoz, hogy a világon elsőként megfigyeljük egy magashőmérsékletű szupravezető szilárd vortexrendszerű (tehát nem vortexfolyadék) fázisában a vortexek mozgásából eredő Hall-effektust.

Statisztikus fizikai számításokkal már korábban megjósolták, hogy a küszöbáram fölött a vortexek a rögzítőcentrumok által meghatározott csatornák mentén mozognak és véges erő kell ahhoz, hogy a vortex kilépjen a csatornából (a csatornára merőleges irányban). Azt a megfigyelésünket, hogy a Hall-effektus csak jóval nagyobb áramoknál jelentkezik, mint a vortexek mozgásának megindulásához szükséges küszöbáram, ezzel a csatornaeffektussal értelmeztük.

3. Kvázirészecske gerjesztések nemkonvencionális szupravezetőkben

Egy izotróp modellben „nemkonvencionálisnak” az olyan szupravezetőket szokás nevezni, melyekben a Cooper-párok impulzusmomentuma a hagyományos izotróp szupravezetőkkel (s -hullám szimmetria) szemben nem zérus (p -hullám, d -hullám, stb.). Ezekben az esetekben tipikus, hogy a rendparaméternek a hullámszám-vektor függvényében nódusa van a Fermi-felületen, és így tetszőlegesen kis energiával gerjeszthetők kvázirészecskék az ilyen szupravezetőben. Mi több, páratlan impulzusmomentumra (p , f) a Cooper-pár spinje 1 (triplett állapot), így a spinszuszceptibilitás véges marad a $T \rightarrow 0$ határesetben.

Az alacsonyan fekvő gerjesztések természetesen hatással vannak a szupravezető termodinamikai és transzport tulajdonságaira. Számításokat végeztünk [1,3,13] a nemkonvencionális szupravezetők több különböző modelljében az optikai vezetőképesség meghatározására. Eredményeink alkalmasak lehetnek arra, hogy behatárolják a nemkonvencionális szupravezetők rendparaméterének lehetséges szerkezetét.

Figyelemre méltó tulajdonsága számos MHSZ-nek, hogy az állapotsűrűség a Fermi-felület közelében már a magashőmérsékleti „normál” fázisban lecsökken a fémes értékhez képest. Úgy szokták mondani, hogy *pseudogap* alakul ki az anyagban. A szupravezetők kvázirészecske gerjesztéseire irányuló vizsgálataink legnagyobb részt a *pseudogap* jelenség megértésére irányultak. A jelenséget mindmáig nem sikerült meggyőzően értelmezni, az erre irányuló kísérletek két csoportra oszthatók. Egyesek amellet érvelnek, hogy a *pseudogap* eredete a már a normál fázisban megjelenő fluktuáló szupravezető rendparaméter, melynek idő- és sokaságátlagos értéke nulla, de abszolútérték négyzetének véges várható értéke van. Mások szerint viszont a *pseudogap* oka egy sztatikus, de „rejtett” rendparaméter, amely különbözik a szupravezető rendparamétertől. A rejtett jelző arra utal, hogy ezt a rendparamétert a szokásos vizsgálati módszerekkel nem lehet kimutatni. Egy lehetséges rejtett rendparaméter az ún. nemkonvencionális sűrűség-hullám (NSH), ami sok szempontból hasonlít a töltéssűrűség-hullámra (TSH), de mivel a rendparaméter Fermi-felületre vett integrálja nulla, nem sérti a translációs szimmetriát.

Számításokat végeztünk [6] a Nernst-együtthatóra d -hullám szimmetriájú NSH fázisban (dSH). Azt találtuk, hogy az eredmények jól leírják a $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ és $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{CuO}_6$ MHSZ-ekben talált anomálishan nagy Nernst-effektust. Ez az eredmény valószínűsíti, hogy – legalábbis ezekben a szupravezetőkben – rejtett dSH rendparaméter van a normál fázisban.

A *pseudogap* jelenség nemcsak MHSZ-ekben, hanem egyéb korrelált fémekben is megfigyelhető, nevezetesen például a TSH alapállapotú egydimenziós (1d) fémekben. Abból a célból, hogy analógiát találjunk az MHSZ-ekben és az 1d fémekben tapasztalt *pseudogap* jelenség között, NMR méréseket végeztünk a $(\text{TaSe}_4)_2\text{I}$ TSH alapállapotú 1d fémen [15,19]. A *pseudogap*-et ebben a rendszerben a TSH rendparaméter 1d fluktuációival magyarázták korábban. A Knight-féle vonaleltolódás és a spin-rács relaxációs idő eredményeink ezzel szemben arra utalnak, hogy valódi tiltott sáv és rejtett rendparaméter van ennek az anyagnak a

magashőmérsékleti fázisában. Megfigyeléseinket sikeresen értelmeztük egy olyan modellben [12], amely szerint a rejtett rend egy NSH és alacsony hőmérsékleten az NSH és TSH rendparaméter együtt létezik.

4. Lokális rend és konfigurációs fluktuációk a $\text{Na}_2\text{CsC}_{60}$ fullerén szupravezetőben

Az A_3C_{60} képletű (A alkálifém) fullerén alapú szupravezetők jól dokumentált tulajdonsága, hogy a fullerénmolekulák közötti távolság függvényében a kritikus hőmérséklet nő. A legkézenfekvőbb magyarázat erre, hogy nő az állapotsűrűség a Fermi-felületen. A növekedés meredeksége lényegesen különböző a lapcentrált köbös (fcc) és tércentrált köbös (sc) fázisban. A két fázis abban különbözik, hogy más a szomszédos molekulák relatív orientációja.

A lokális orientációs rend vizsgálatára kiválóan alkalmas az NMR. Az fcc fázisban a C_{60} molekulákkal tetraédesen koordinált helyen található alkáli magon mért NMR spektrumban a várt egy spektrumvonal helyett kettőt találtak (T és T'). A jelenség értelmezésére tett rendkívüli erőfeszítések nem jártak sikerrel.

Megmutattuk [7,17], hogy a két tetraédes vonal nemcsak az fcc fázis jellemzője, hanem megjelenik az sc szerkezetű $\text{Na}_2\text{CsC}_{60}$, $\text{Na}_2\text{RbC}_{60}$ és $\text{Na}_2\text{KC}_{60}$ szupravezetőkben is, és így általános jellemzője az A_3C_{60} családnak. Egy a közeli szomszédokra nagyon érzékeny kétdimenziós spektroszkópiai módszerrel, a spin echo kettős rezonancia (SEDOR) kísérlettel megmutattuk [16], hogy ez a nem várt T' csúcs az anyag tömbi tulajdonsága, nem pedig a mintábelkülönülő esetleges hibák hatása. Megállapítottuk a C_{60} molekulák rotációs dinamikájára érzékeny ^{13}C jel elemzésével, hogy a két vonal T és T' helyek C_{60} molekulák által közvetített kémiai kicserélődés következménye. Széles tartományban leírtuk és értelmeztük a kicserélődési dinamikát [17].

Hivatkozások

1. B. Dóra, K. Maki and A. Virosztek: *Optical conductivity of superconducting Sr_2RuO_4* , Europhys. Lett. 62, 426-32, 2003.
2. I. Pethes, A. Pomar, B. Sas, G. Kriza, K. Vad, A. Pallinger, F. Portier, F.I.B. Williams: *Potential and current distribution in strongly anisotropic $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ single crystals at current breakdown*, Phys. Rev. B 68, 184509/1-9, 2003
3. A. Virosztek, B. Dóra, K. Maki: *Optical conductivity of the triplet superconductor Sr_2RuO_4* , Physica C 408-10, 686-7, 2004
4. I. Nándori, K. Vad, S. Mészáros, J. Hakl, B. Sas: *Length-scale dependence in layered superconductors*, Czech. J. Phys. 54, D481-4, 2004
5. J. Hakl, S. Mészáros, K. Vad, L. Kerekes, P.F. de Châtel, Z. Németh, Z. Homonnay, A. Vértes, Z. Klencsár, E. Kuzmann, K. Kellner, G. Gritzner: *Magnetic and electronic properties of $\text{Eu}_0.8\text{Sr}_0.2\text{CoO}_3$* , Czechoslovak Journal of Physics, Vol. 54, Suppl. D D307-10, 2004
6. K. Maki, B. Dóra, A. Virosztek, and A. Ványolos: *Giant Nernst effect in the pseudogap phase of high T_c superconductors*, Current Applied Physics 4,693-5, 2004
7. Matus P, Alloul H, Singer PM, Brouet V, Kriza G, Garaj S, Forró L: *Fullerene local order in $\text{Na}_2\text{CsC}_{60}$ by ^{23}Na NMR*, App. Mag. Res. 27, 133-8, 2004

8. Péter Matus, György Kriza, Henri Alloul: ***Study of the local orientation of fullerene molecules in Na₂CsC₆₀ using Nuclear Magnetic Resonance (NMR) spectroscopy***, Magyar Kémiai Folyóirat 109-110, 112-5, 2004
9. B. Dóra, K. Maki, A. Virosztek: ***D-wave density waves in CeCoIn₅ and high-T_c cuprates***, J. Phys. (Paris) IV 131,319-22, 2005
10. K. Vad, S. Mészáros, B. Sas: ***Transverse and secondary voltages in Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ single crystals***, Physica C 432, 43-52, 2005.
11. Z. Németh, G. Gritzner, J. Hakl, K. Vad, S. Mészáros, L. Kerekes et al.: ***The effect of iron doping in La_{0.8}Sr_{0.2}Fe_{0.05}Co_{0.95}O_{3-δ} perovskite***, Eur. Phys. J. B 43, 297–303, 2005
12. B. Dóra, A. Ványolos, A. Virosztek: ***The pseudogap phase in (TaSe₄)₂I***, Phys. Rev. B (accepted), 2006
13. B. Dóra, K. Maki, and A. Virosztek: ***Optical conductivity in nodal superconductors***, Current Applied Physics (accepted), 2006
14. K. Maki, B. Dóra, A. Virosztek: ***Unconventional density waves in organic conductors and superconductors***, In "The Physics and Chemistry of Organic Superconductors and Conductors", Edited by A. Lebed (Springer, Berlin, to be published), 2006.
15. L. Németh, P. Matus, G. Kriza: ***⁷⁷Se NMR properties of (TaSe₄)₂ I: Evidence for true gap and hidden order***, Phys. Rev. B (submitted), 2006.
16. P. Matus, H. Alloul, G. Kriza, V. Brouet, P.M. Singer, S. Garaj, L. Forró: ***NMR evidence for C₆₀ configurational fluctuations around Na sites in Na₂CsC₆₀***, J. Superconductivity (accepted), 2006.
17. P. Matus, H. Alloul, V. Brouet, P.M. Singer, G. Kriza, S. Garaj, L. Forró: ***Influence of local fullerene orientation on the electronic properties of A₃C₆₀ compounds***, előkészületben.
18. Á. Pallinger et al., kiadatlan.
19. L. Németh, G. Kriza, P. Matus, B. Alavi: ***NMR evidence of hidden order in the high-temperature phase of (TaSe₄)₂I***, J. Phys. IV France **131** (2005) 357–358