



*Relaxációs jelenségek vizsgálata mágneses
rendszerekben*

doktori (PhD) értekezés

Kerekes László

Debreceni Egyetem,
Természettudományi Kar
Debrecen, 2006

Ezen értekezést a Debreceni Egyetem TTK *fizika tudományok* doktori iskola *szilárdtestfizika és anyagtudomány* programja keretében készítettem a Debreceni Egyetem TTK doktori (PhD) fokozatának elnyerése céljából.

Debrecen, 2006.

Kerekes László

Tanúsítom, hogy *Kerekes László* doktorjelölt 1997 - 2006 között a fent megnevezett doktori iskola szilárdtestfizika és anyagtudomány programjának keretében irányítással végezte munkáját. Az értekezésben foglalt eredményekhez a jelölt önálló alkotó tevékenységével meghatározóan hozzájárult. Az értekezés elfogadását javaslom.

Debrecen, 2006

Dr. Vad Kálmán
témavezető

Tartalomjegyzék

1	BEVEZETÉS	1
1.1	TERMIKUSAN AKTIVÁLT RELAXÁCIÓ.....	2
2	A TÉMA IRODALMI ÁTTEKINTÉSE	5
2.1	RELAXÁCIÓS JELENSÉGEK NANOKRISZTALLITOS FERROMÁGNESES ANYAGOKBAN	5
2.2	RELAXÁCIÓS JELENSÉGEK PEROVSKIT ANYAGOKBAN	6
2.2.1	<i>A vasdoppolás hatása</i>	10
2.2.2	<i>A relaxáció</i>	11
2.3	RELAXÁCIÓS JELENSÉGEK SZUPRAVEZETŐ ANYAGOKBAN	14
2.4	A SZUPRAVEZETŐK ELEKTRODINAMIKÁJA	16
2.4.1	<i>London-elmélet</i>	16
2.4.2	<i>Ginzburg-Landau elmélet</i>	17
2.4.3	<i>I. típusú szupravezetők</i>	20
2.4.4	<i>II. típusú szupravezetők</i>	20
2.4.5	<i>Elemi fluxuskvantum</i>	21
2.4.6	<i>Örvényszálak tasztítása</i>	21
2.4.7	<i>Örvényszálak mozgása és energia disszipáció</i>	23
2.5	BEAN-MODELL	26
3	KÍSÉRLETI VIZSGÁLATI MÓDSZEREK	28
3.1	GYORS LEMÁGNESEZÉSRE IS ALKALMAS MÁGNES/KRIOSZTÁT RENDSZER KIDOLGOZÁSA.....	29
3.1.1	<i>A mágnes</i>	29
3.1.2	<i>Alacsonyhőmérsékleti kriosztát</i>	34
3.2	RÁDIÓFREKVENCIÁS KOMPLEX MÁGNESES SZUSZCEPTIBILITÁS MÉRÉSÉRE KIDOLGOZOTT MÉRŐRENDSZER (RF AC SZUSZCEPTOMÉTER).....	35
3.3	AZ ELEKTRONIKAI JELFELDOLGOZÓ EGYSÉG FELÉPÍTÉSE	42

4	SAJÁT EREDMÉNYEK	44
4.1	NANOKRISZTALLITOS FERROMÁGNESES ANYAGOK	44
4.2	EuSrCoO és LaSrCoO PEROVSZKIT ANYAGOK	51
4.3	A MÁGNESES ÖRVÉNYRENDSZER RELAXÁCIÓJA $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ -BAN	62
5	ÖSSZEFOGLALÁS	70
6	SUMMARY	72
7	KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS	74
8	IRODALOMJEGYZÉK	75

1 Bevezetés

Minden fizikai rendszer rendelkezik egy, a külső feltételek által meghatározott energiaminimummal és arra törekszik, hogy elérje ezt a minimumot. Makroszkópikus fizikai rendszereknél termodinamikai egyensúlyi állapotról beszélünk, melyet az adott külső feltételeknek megfelelő termodinamikai potenciál minimuma jellemez. Ha valami miatt megváltoznak a rendszer állapotát meghatározó paraméterek értékei, akkor a rendszer igyekszik átmenni az új paraméterek által meghatározott egyensúlyi állapotba. Ez a folyamat általában nem pillanatszerűen játszódik le, idő szükséges az új egyensúlyi állapot eléréséhez. A rendszernek ezen új állapotba való átmenetét jellemzi a relaxáció. A relaxáció meglétének egyik oka lehet az, hogy a rendszer olyan belső időállandókkal rendelkezik, melyek nem teszik lehetővé a külső paraméter változások azonnali követését. Gondoljunk például olyan esetre, amikor egy elektronikai áramkör kondenzátorokat vagy tekercseket tartalmaz. Másrészt lehet az oka az is, hogy a rendszer az új egyensúlyi állapotot csak termikusan aktivált folyamatok segítségével tudja elérni. Egészen alacsony hőmérsékleten pedig a kvantummechanikai alagúteffektus is szerepet játszhat az új állapot felé való törekvésben.

A relaxációs folyamatok tanulmányozása összetett rendszerekben elősegíti a rendszerek belső tulajdonságainak a feltárását. Nagyon fontos megérteni a relaxáció folyamatát üvegszerű tulajdonságokat mutató rendszerekben, amilyenek például a viszkózus folyadékok, polimerek és egyéb kémiai anyagok. Egymásba épített és egymással kölcsönható rendszerek tanulmányozása a belső relaxációs folyamatokon keresztül információt szolgáltat az összetett rendszer belső törvényszerűségeire is. Valós fizikai és kémiai rendszerek relaxációs folyamatainak a tanulmányozásával megállapítható, hogy kölcsönhatásmentes összetett rendszerekben (pl. oldatban lévő elszigetelt atomok, molekulák) a relaxáció rendszerint *exponenciális* jellegű. Ezek az Arrhenius-típusú relaxációs folyamatok: a potenciál gát nagysága, amelyek a rendszert alkotó elemek mozgását vagy állapotváltozását korlátozza, időben nem változik. De, ha a rendszerek elég sűrűn vannak egymásba ágyazva, továbbá a rendszereken belül és egymás között is van kölcsönhatás, a relaxációs folyamat már nem ilyen egyszerű. Bizonyos esetekben a relaxáció az idő *logaritmusával* fog változni és számos új jelenség is fellép. Ilyenkor a rendszerek közötti csatolási modellek segítségével lehet megérteni a relaxációs folyamatokat.

1.1 Termikusan aktivált relaxáció

A kutatómunkám során olyan rendszereket vizsgáltunk, amelyek sok részecskéből állnak, és alkalmazható rájuk a statisztikus fizika eszköztára. A rendszert alkotó részecskék a potenciálgáton átjutva a rendszer olyan konfigurációját hozzák létre, amelynek kisebb az energiaállapota. Mivel a rendszert nagyon sok részecske alkotja, ezért ennek megfelelően nagy számú köztes energiaállapottal rendelkezik. A részecskék mindegyike arra törekszik, hogy egy magasabb energiaszintű állapotból egy alacsonyabb energiaszintű állapotba jusson. Ez a folyamat a rendszer egészének szintjén úgy jelenik meg, hogy a rendszer folyamatosan egyre alacsonyabb szintű energiaállapotba kerül.

Először tekintsük azt az esetet, amikor a rendszer egymástól független részecskék együtteseként kezelhető. Álljon N db részecskéből, melyeknek csak két különböző energiájú állapota van. Egy tetszőleges t időpillanatban a magasabb energiaszintű állapotban lévő részecskék száma legyen x , az alacsonyabb szinten lévőké pedig értelemszerűen $N-x$. Annak a valószínűségét, hogy egy részecske egységnyi idő alatt a magasabb energiaszintű állapotból az alacsonyabb energiaszintű állapotba kerül, jelöljük w -vel. Ekkor a magasabb energiaszinten lévő részecskék számának időbeli változását a következő összefüggés segítségével tudjuk leírni:

$$\frac{dx}{dt} = -x(t) \cdot w.$$

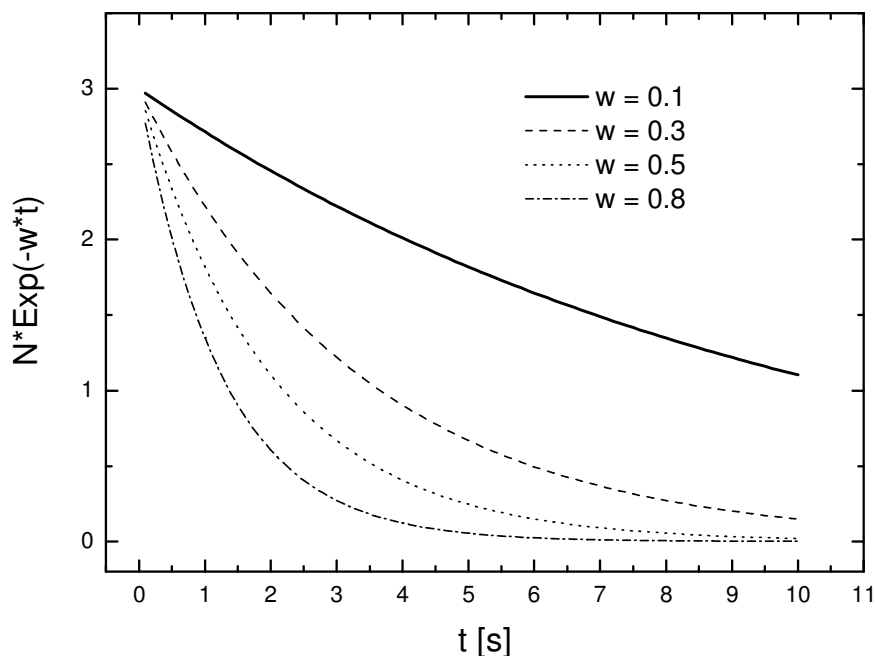
Átrendezve az egyenletet és felhasználva az $x(t=0)=N$ kezdeti feltételt az alábbi egyenletet kapjuk:

$$\int_N^x \frac{1}{x(t)} dx = \int_0^t -w dt.$$

Elvégezve az integrálást és átrendezve az egyenletet, a már jól ismert exponenciális függvényt kapjuk:

$$\ln \frac{x}{N} = -w \cdot t.$$

Vagyis x időbeli lefutása a következőképpen néz ki:



1. ábra.

A relaxáció időbeli lefutása a w paraméter különböző értékeinél.

Látható, hogy rögzített N értékeknél a relaxáció időbeli lefutása erősen függ a w paraméter értékétől. Ha olyan rendszerünk van, amelyben egy részecske alacsonyabb energiaállapotba való kerülése adott frekvenciájú sugárzás kibocsátásával jár együtt, akkor a relaxáció jelentősen felgyorsul, ha az elektromágneses sugárzási térben jelen van az átmenetnek megfelelő hullámhosszúságú komponens. Így lesz a spontán emisszióból indukált emisszió. Ilyen rendszerre példaként említhetjük a foszforeszkáló anyagokat. Olyan rendszerre is számos példa akad, amelyekben a w függ a hőmérséklettől. Ezekben az esetekben az energiagát állandó értékű és nem függ a relaxációs folyamat előrehaladásától. A w hőmérsékletfüggésének az oka az, hogy a termikus aktiváció átlagos energiája és ezzel a potenciálgáton történő átjutás időegységre

eső valószínűsége függ a hőmérséklettől. Erre példaként említhetnénk a következő rendszereket:

- Olyan spin rendszer, melyben az összes spin egy irányban áll. Itt az energiagát a spinek átfordulását akadályozza.
- Diffúziós rendszerek, melyekben a diffundáló részecskéknek kell a szerkezet által meghatározott energiagátat átugrani.

Ha ezekben a rendszerekben elég alacsony hőmérsékleten már nem tapasztalunk hőmérsékletfüggést, akkor a kvantummechanikai alagúteffektus megjelenésére kell gondolnunk.

Vannak azonban olyan rendszerek is, melyekben az egy adott alkotórész (pl. spin) kölcsönhatása a szomszéd alkotórészekkel „frusztrált”. Ennek egyik következménye, hogy a rendszernek valójában sok, energetikailag közel azonos állapota van, a másik pedig, hogy az adott alkotórész által érzékelt effektív potenciálját konfigurációfüggő, s ezért a relaxációs folyamat során nem állandó.

Nanokristallitos mágneses rendszerek sok tulajdonságban hasonlítanak az üvegállapottal jellemezhető más rendszerekhez az anizotrópia tengelyek véletlenszerű eloszlása, a részecskék közötti kölcsönhatások, valamint a felületi járulékok miatt. A mágneses viselkedésüket illetően ugyancsak üvegszerű viselkedést mutatnak a perovszkit mágneses anyagok és a magas átmeneti hőmérsékletű szupravezetők is. Emiatt vált lehetővé a látszólag egymástól független anyagcsaládok relaxációs jelenségeinek közös vizsgálata. Dolgozatomban nanokristályos szerkezetű vas mágneses relaxációs jelenségeivel, LaSrCoO és az EuSrCoO perovszkit szerkezetű kobaltoxidok, valamint a BiSrCaCuO magas átmeneti hőmérsékletű szupravezető anyagok mágneses relaxációs jelenségeivel foglalkozom.

Különböző frekvenciákon történt váltakozó áramú szuszceptibilitás méréssel az említett rendszerek dinamikai viselkedését tanulmányoztam. E mérések alapján megmutatom, hogy az erősen kölcsönható elemekből álló, a ferromágneses spinklaszter üveg – spinüveg fázisátmenet határán lévő rendszer a doppelás hatására a spinüveg fázis irányába csúszik.

2 A téma irodalmi áttekintése

2.1 *Relaxációs jelenségek nanokristallitos ferromágneses anyagokban*

Nanokristály szerkezetű anyagok mágneses tulajdonságai különböznek a polikristály és egykristály szerkezetű anyagok mágneses tulajdonságaitól. Ez a különbség különösen az alacsonyhőmérsékleti tartományban tapasztalható. A nanoméretű szemcsék közötti mágneses kölcsönhatás alacsony hőmérsékleten rögzíthet ('befagyaszthat') egy mágneses momentum eloszlást és ezzel egy lokális energiaminimumot úgy, hogy abból csak egy lassú relaxációval tud a rendszer átmenni alacsonyabb energiaállapotba. Ilyen típusú mágneses állapot befagyását kísérletileg tömbi ferromágneses anyagban először L. Del Bianco és munkatársai mutatták ki [1]. Nanokristallitos ferromágneses anyag magas hőmérsékleten szuperparamágnesként viselkedhet, mely szuperparamágnesség alacsony hőmérsékleten spinüveg vagy spinklaszter-üveg viselkedést mutat. Nanokristály szerkezetű anyagokban a nanoméretű hibamentes kristályok (még az 'egy szemcse' - 'egy kristály' szerkezetben is) szemcsehatárral vannak elválasztva egymástól, mely szemcsehatár szerkezet az anyag jelentős részét tölti ki. Ha a szemcsehatár 'anyag' is ferromágneses vagy paramágneses tulajdonsággal bír, a ferromágneses szemcse polarizálja a határfelületet. Ha ez a polarizáció elősegíti a szomszédos szemcsék polarizációját, ferromágneses állapot alakul ki, ha nem, az anyag szuperparamágnességet fog mutatni. Mint fentebb említettem ez a szuperparamágneses állapot egy adott hőmérsékleten megszűnik és a rendszer spinklaszter-üveg állapotba kerül. Az átmenet folyamata nincs teljesen tisztázva. Míg Alben és Becker [2] elmélete szerint az üvegállapotba való átmenet a szemcsehatárok szerkezeti rendezetlensége miatt alakul ki, addig Bonetti és munkatársai [3] szerint a szemcsehatárban bekövetkező szerkezeti változás módosítja a szemcsék közötti kölcsönhatás jellegét. Ha a szemcsehatár spinüveg jellegű és a hőmérséklet alacsonyabb mint ezt a spinüveg állapotot jellemző T_g átmeneti hőmérséklet, a spin orientációk rendezetlen módon történő befagyása lecsökkenti a szemcsék közötti dipól-dipól kölcsönhatás erősségét. Ekkor az várható, hogy a szuperparamágneses átmenet (átmeneti hőmérsékletét T_B -vel jelöljük) a spinüveg átmenetnél alacsonyabb hőmérsékleten következik be: $T_B \leq T_g$.

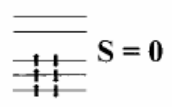
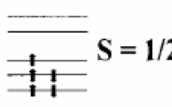
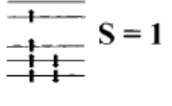
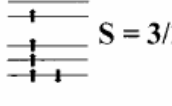
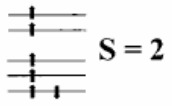
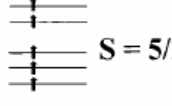
2.2 Relaxációs jelenségek perovszkit anyagokban

A perovszkit rendszerű (ABO_3 , A: alkáli földfém, B: átmeneti fém) oxidok a mangán alapú tagjaikon keresztül 1993-ban kerültek ismételt a tudományos érdeklődés középpontjába, mivel a külső mágneses térrel rendkívüli mértékben (10^3 - 10^5 arányban) lehet az elektromos vezetőképességüket változtatni [4]. Ezt az óriási ellenállás változást kolosszális mágneses ellenállásnak (CMR – colossal magnetoresistance) nevezték el. A CMR a fémes és szigetelő állapotok versengéséből ered és egy perkolatív jellegű fázisszeparáció állhat a jelenség hátterében [5]. Transzmissziós elektronmikroszkópos felvételekből kiderült, hogy pl. a kémiailag egyfázisú $La_{1-x-y}Pr_yCa_xMnO_3$ -ban egyidejűleg léteznek töltésrendezett (charge ordered) szigetelő és a töltésrendezetlen (charge disordered) ferromágneses-fémes fázisok. Mind az elmélet, mind a kísérleti eredmények azt indikálják, hogy elsőrendű fázisátalakulás játszódik le az elektronrendszer lokalizáltról itineránsra váltása során. Ha a lokalizált elektron / itineráns elektron szegregáció hőmérséklete túl alacsony az atomi diffúzióhoz, akkor ez a fázisszegregáció kismértékű atomi elmozdulások, azaz a elemi cella deformációja útján jön létre. A perovszkit rendszerű átmeneti fém (M) - alkáli fém oxidokban az oxigén (O) elmozdulás a (180° - ϕ) M-O-M kötésben rövidebb kötést hoz létre az egyik oldalon, mint a másikon. A kooperatív oxigén elmozdulások szegregálhatják a rövidebb oxigén-fém kötésű területeket a hosszabbaktól, és egy olyan rendszerben, ahol az átmenetifém kevert valenciaállapotú, magasabb valencia állapotok a rövidebb M-O doménekben található. Ily módon, az elektronikus fázisszeparáció létrejöhet kémiai inhomogenitások nélkül is. Ráadásul ez a fajta fázisszeparáció a külső mágneses tértől függő mobil határokkal rendelkezik.

A fentebb vázolt mangánit perovszkitokhoz képest a dolgozatomban tárgyát képező perovszkit kobaltitok egy sor további érdekes tulajdonsággal rendelkeznek, amelyek teljesen különböznek a jól tanulmányozott mangánitokétól [6], [7]. Ezek a kobaltit rendszerek termikusan aktivált spinátmenetei [8] és a doppelkobaltitok szokatlan mágneses alapállapotai [9], [10].

A kobaltitoknál a Co ion valenciaállapota Co^{3+} , ennek megfelelően spinje 0. A rendszer termikusan aktivált spinátmenetet mutat, mely megérthető annak figyelembe vételével, hogy a doppelatlan $LaCoO_3$ rendszerben az E_{ex} kicserélődési energia (Hund-szabály) és a kristálytér felhasadás (E_{CF}) összemérhető. Emiatt a spin-gap energiakülönbség kicsi (10 meV nagyságrendű

[11]) és ez ahhoz vezet, hogy a termikus energia 100 K környékén már elegendően nagy ahhoz, hogy populálja az e_g állapotot. Mivel ennek az állapotnak a spinje 1, ennek megjelenése gyorsan növekvő szuszceptibilitáshoz vezet. Ez az egyedülálló helyzet a Co ionok számára lehetővé teszi, hogy a kobaltitokban olyan spinállapotokat vegyenek fel, amelyek más Co vegyületekben nem figyelhetők meg (köztes spin állapot, IS).

Spin-state	Co ³⁺	Co ⁴⁺
LS (low spin)	 S = 0	 S = 1/2
IS (intermediate spin)	 S = 1	 S = 3/2
HS (high spin)	 S = 2	 S = 5/2

2. ábra.

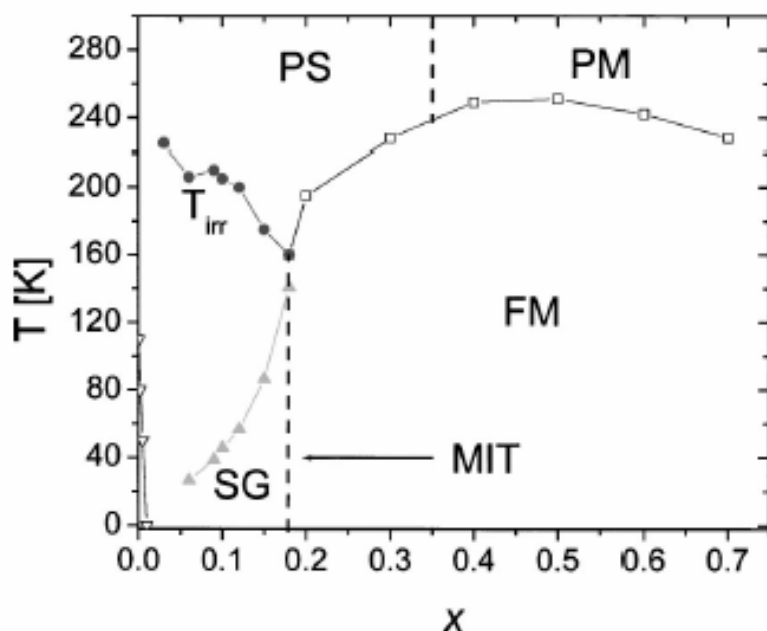
Kobalt ionok lehetséges spinállapotai, az alsó energiaszintek a t_{2g} , míg a felső az e_g állapotokhoz tartoznak [15].

A $\text{La}^{3+} \rightarrow \text{A}^{2+}$ doppelás hatására további érdekes tulajdonságok jelennek meg a LaCoO_3 alapú rendszerben. Specifikusan a $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ további két eléggé szokatlan tulajdonságot mutat. Először is, a Co^{3+} ionok alacsony spinállapota (LS) már $x=0,002$ nagyságrendű Sr doppelásnál megszűnik és az átmenet az alacsony spinállapotból a köztes spinállapotba megtörténik. Az $x=0$ -nál tisztán termikusan aktivált spinátmenet jeleit mutató szuszceptibilitás gyorsan csap át paramágneses viselkedésbe (χ simán változik, ahogy $T \rightarrow 0$) már $x=0,005$ -nél. Ezt a jelenséget Yamaguchi et. al. 10-15 átlagos spinű mágneses polaronok képződésével magyarázta [12].

Növekvő Sr szinttel a rendszer spinüvegszerű jellemzőket mutat (frekvenciafüggő csúcsok az AC szuszceptibilitásban, csúcs a DC mágnesezettségben nulla mágneses térben való hűtéskor (ZFC)) egyidejűleg olyan tulajdonságokkal, amelyek a ferromágnességhez kapcsolhatók (pl. mágneses térben való hűtéskor (FC) nagy mágnesezettség, irreverzibilitási vonalak a fázisdiagramban, stb). Magasabb Sr doppelás hatására látszólag beáll a „tömbi ferromágnesség” $T_c \sim 250$ K körüli Curie hőmérséklettel, de megmaradnak az üveges mágneseesség jelei is, mint a frekvenciafüggő csúcsok az AC szuszceptibilitásban. Lényegében a $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ tömbi mágnesezettsége kevert állapotként írható le, amely mind ferromágneses, mind üvegszerű tulajdonságokat mutat (glassy ferromagnetism).

Ezeknek az adatoknak a legegyszerűbb mikroszkópikus interpretációja, hogy a mágneses alapállapot egy szigetelő antiferromágneses (AF) mátrixban véletlenszerűen beágyazott ferromágneses (FM) fémes klaszterekből áll. Így a $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ is (mágneses és az elektronrendszerhez köthető) fáziszeváparációt mutat. A kétszeres kicserélődés (double exchange, DE) adja a ferromágnességet a klasztereken belül, míg az azonos valenciaállapotú ionok közötti versengő antiferromágneses szuperkicserélődés üvegszerű állapothoz vezet. A legújabb nagyfelbontású transzmissziós elektronmikroszkópos felvételek és a mágneses rezonancia mérések [13], [14] erős kísérleti bizonyítékot szolgáltatottak erre a képre.

Részleteiben tekintve a $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ fázisdiagramja a 3. ábrán látható [15]. A fázisdiagramot az $x=x_c$ ($0,15 < x_c < 0,18$)–nél lévő átmenet dominálja. E fölött az FC mágnesezettség ferromágneses rendeződést mutat, alatta spinüveg jellegű. A T_c monoton csökken, miközben csökkentjük x -et 0,5-ről 0,18-ra. Alatta a fázisdiagramot a T_f határozza meg, mely csökken x -el. x_c jelöli azt a pontot, ahol a ferromágneses klaszterek összenőnek és lehetővé teszik FC esetén a mágneseesség ferromágneses szerű hőmérséklet változását a klaszterek „összehangolásán” keresztül. A véges T_c létevése annál a pontnál, ahol átlépünk a ferromágneses rendezett fázisba, erős evidencia a perkolálódo ferromágneses klaszterekre.



3. ábra.

A $La_{1-x}Sr_xCoO_3$ mágneses fázisdiagramja. PS – paramágneses félvezető, PM –paramágneses fém, SG –spinüveg, FM –ferromágnes, MIT –fém/szigetelő átmenet, T_{irr} – irreverzibilitási hőmérséklet, ahol az FC és ZFC mágnesezettség a hőmérséklet függvényében mérve szétválnak.

Nagyon alacsony x értékekből kiindulva a rendszert a Co^{3+} ionok közötti AF kölcsönhatások uralják. Ahogy az x -et növeljük, a Co^{4+} ionok száma nő és a rendszer szeparálódik: ferromágnesesen kölcsönható lyuk-gazdag klaszterek jelennek meg egy antiferromágnesesen korrelált mátrixban. Nagyfelbontású elektronmikroszkópos felvételek 10 nm méretskálán inhomogenitást mutatnak ki. Ahogy az FM klaszterek növekvő x -el nőnek, az a hőmérséklet (T_f), ahol a ferromágneses és antiferromágneses kölcsönhatások versengenek és a spinüvegesezés előfordul, nő. Így a $T_f(x)$ vonal monoton emelkedik x -el és az x_c -ben csatlakozik $T_c(x)$ -hez, ahol a klaszterek egybeérnek. A spinüveg állapot oka az AF szuperkicserélődés (Co^{3+} - Co^{3+} és Co^{4+} - Co^{4+} között) és az FM kettőskicserélődés (Co^{3+} - Co^{4+} között) közti frusztráció.

A DC mágneses mérések alapján a $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ vegyület átmenetet mutat egy $x < 0,18$ -nál SG dominált fázisból egy $x > 0,18$ FM dominált fázisba, bár mindkét esetben az alapállapot nem tiszta. A $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ AC szuszceptibilitása is jól tükrözi ezt a kettős jelleget és szisztematikus módon változik, ahogy az x -et csökkentjük az FM rezsimből az SG dominált fázisba. Az FM dominált fázisban a $\chi'(T)$ egy frekvencia független csúcsot mutat a T_c -nél. Ez a csúcs az x csökkenésével csökken. Amikor elérjük az SG fázist, a csúcs frekvenciafüggővé válik és befagyási hőmérsékletet mutat. Másrészt az FM fázisban a $\chi''(T)$ a T_c -nél kezd emelkedni egy frekvencia független csúcsba. Ezt követi egy másik csúcs $T \ll T_c$ -nél, amely erősen frekvenciafüggő. Ez az a hőmérséklet, ahol a ferromágneses klaszterek befagynak. Az FM fázisban a frekvencia független diszperzió (χ') és abszorpció (χ'') egy hosszú távú mágneses rend léteire utal.

A $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ elektrontranszport tulajdonságai erős csatolást mutatnak a mágneses tulajdonságokkal [16], [17]. A fém/szigetelő átmenet is az x_c -nél található, konzisztens módon a perkolációs átmenettel. A ferromágneses klaszterek ennél a pontnál kezdenek egybeérni, a ferromágnesség egyidejű beállásához vezetve. Az $x=0,18-0,7$ tartományban, a fém/szigetelő átmenet fémes oldalán, a mágneses ellenállás első sorban a Curie hőmérséklet környékén figyelhető meg, hasonlóan a jól ismert CMR effektushoz a doppel manganát perovszkitokban [18]. Azonban az $x=0,05-0,15$ tartományban, ahol az anyag ferromágneses átmenet nélküli félvezető, az MR a $T \approx 100$ K alatt a legjelentősebb. Az $x=0,05-0,15$ tartományban alacsony hőmérsékleten megfigyelt mágneses ellenállás 5-10-es faktossal meghaladja a jobban doppel kobalt perovszkitok Curie hőmérséklet környékén megfigyelt MR-t.

2.2.1 A vaddoppelás hatása

A kísérleti megfigyelések szerint a perovszkit szerkezetű (ABO_3) ritka földfém (A) átmeneti fém (B) oxidok mágneses és elektrontranszport tulajdonságai erősen függenek a fém ionok valencia és spin állapotától. B helyen doppelva a különböző fém ionok relatív részarányának jelentős hatása lehet az anyag tulajdonságaira. Ebből a szempontból érdekes kérdés egy Co/Fe csere, tekintve hogy a Fe^{3+} páratlan számú törzselektronjai miatt a spinje nullától különböző. (A $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ -ban a Sr doppelás miatt a Co x hányada Co^{4+} állapotban van, ami alacsony spinű állapotban $S=1/2$ spinnel, mind az 5 elektron a t_{2g} pályán található (2. ábra). A Co^{4+} izoelektronikusan helyettesíthető Fe^{3+} ionnal, a két ion átmérője is közel egyenlő.)

A doppelás tulajdonságbefolyásoló hatása várhatóan legérzékenyebben a SG/FM fázishatár környékén (La:Sr=0,8:0,2) tanulmányozható.

A megfigyelések szerint a vassal történő doppelásnak valóban szembeötlő hatása van. A legújabb megfigyelések szerint a kobalt parciális helyettesítése a $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_{3-\delta}$ ($x=0,025-0,3$) [19], $\text{La}_{67}\text{Sr}_{33}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_{3-\delta}$ ($x=0,05-0,3$) [20] drasztikusan megnöveli az alacsony hőmérsékletű MR-t a vasmentes összetételhez képest. $T=4,2$ K-en a $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_{0,05}\text{Co}_{0,95}\text{O}_{3-\delta}$ -ban megfigyelt mágneses ellenállás változás értéke elérte a 70%-ot [21].

A korai mérések erős mágneses ellenállást jósoltak még szobahőmérsékleten is $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_{0,05}\text{Co}_{0,95}\text{O}_{3-\delta}$ -ban, ugyanúgy mint Barman [19], de a legfrissebb méréseknek nem sikerült a mágneses rendezési hőmérséklet felett MR-t megfigyelniük [21], [22], [23], [24]. Ezzel szemben [15] Wu vasmentes kobaltit MIT átmenetének félvezető oldalán talált szobahőmérsékletű MR-t. Ez az irodalmi ellentmondás rámutat arra, hogy az átmeneti MIT tartomány „élén” megfigyelhető tulajdonságok rendkívül érzékenyek a mintakészítés körülményeire, és a tulajdonságok egy része esetleg rejtve maradhat.

2.2.2 A relaxáció

A $\text{La}_{67}\text{Sr}_{33}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_{3-\delta}$ -ra megmutatták, hogy a vas doppelás csökkenti a mágnesszettséget és a Curie hőmérsékletet [20], de a megfigyelt alacsony hőmérsékletű MR maximum sokkal kisebb, mint a $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_{0,05}\text{Co}_{0,95}\text{O}_{3-\delta}$ -ban. A $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_{0,05}\text{Co}_{0,95}\text{O}_{3-\delta}$ -ra ^{57}Fe Mössbauer spektroszkópiai és mágneses méréseink mágnesesen rendezett klaszterek képződését jelezték a mágneses rendezési hőmérséklet körül, amelyek felelőssé tehetők a Fe tartalmú perovszkit 5%-os CMR jeléért [21].

Felmerül a kérdés, hogy mi a vas szerepe a klaszterek méretének és a klaszterek megjelenési hőmérsékletének alakításában.

A spin rendszerek rendezettsége, befagyása és ezen keresztül a fenti kérdés is jól nyomon követhető hőmérsékletfüggő AC szuszceptibilitás mérésekkel. Egy adott hőmérsékleten különböző frekvenciákon felvett szuszceptibilitás adatok egyfajta gyors-relaxációs mérésnek tekinthetők, ahol különböző időablakokban vizsgáljuk a (spin)rendszer azon képességét, hogy milyen gyorsan tud alkalmazkodni a külső térhez.

Az atomi paramágnesség esetén a $\chi(\omega)=\chi'(\omega)-i\chi''(\omega)$ AC szuszceptibilitás frekvenciafüggését a spin rendszer és a rács közötti relaxáció határozza meg.

Ebben az esetben a χ' diszperziót és χ'' abszorpciót a Casimir-du Pré egyenletek kapcsolják össze:

$$\chi' = \chi_s + \frac{\chi_T - \chi_s}{1 + (\omega\tau)^2}$$

$$\chi'' = \omega\tau \frac{\chi_T - \chi_s}{1 + (\omega\tau)^2},$$

ahol τ a spin-rács relaxációs idő és $\tau = v^{-1} \exp(U/k_B T)$, χ_T az izotermális szuszceptibilitás az $\omega\tau \rightarrow 0$ határértékben és megegyezik a DC termikus egyensúlyi szuszceptibilitással, χ_s az adiabatikus szuszceptibilitás $\omega\tau \rightarrow \infty$ határértékben.

Ha $\chi''=0$, akkor vagy $\omega\tau \rightarrow 0$ és a χ_T egyensúlyi izotermális szuszceptibilitást mérjük, vagy $\omega\tau \rightarrow \infty$ és a rácstól teljesen lecsatolt χ_s adiabatikus szuszceptibilitást mérjük. A fenti összefüggésekből az is látható, hogy $\omega\tau=1$ esetén az abszorpciónak maximuma van. Adott T hőmérsékleten ez megadja a $\tau_{\text{avg}}(T)$ relaxációs időt. Nem tisztán atomi paramágneses rendszer esetén a fenti modell általában nem szigorúan érvényes, de a relaxáció jellegének megvilágítására alkalmas.

Egydomén nem kölcsönható részecskére, az alacsony hőmérsékletű blokkolt állapottól a magas hőmérsékletű szuperparamágneses állapotig a τ relaxációs idő nagyon nagy értékről nagyon kis értékre csökken. Így adott ω ($=2\pi f$) esetén az $\omega\tau$ csökkenni fog $\sim\infty$ -ról (alacsony T) ~ 0 -ra (magas T). Mivel a csúcs a $\chi''(T)$ -ben az $\omega\tau=1$ -nél jelenik meg, ezért:

$$\omega[v^{-1} \exp(U/k_B T_p)] = 1,$$

ahol T_p jelöli a csúcs csömérsékletét a $\chi''(T)$ -ben. A frekvencia változtatásával a csúcs hőmérséklete ennek megfelelően változik, és a fenti összefüggést gyakran használják az U energiagát és a v attempt frekvencia meghatározására.

Spin klaszterek közötti korrelációk (kölcsönható rendszer) esetén a fenti Arrhenius típusú összefüggés helyett a relaxációs csúcs fizikájának leírására a fenomenologikus Vogel-Fulcher összefüggést használják:

$$\tau = \tau_0 \exp\left[\frac{U}{k_B(T - T_0)}\right],$$

ahol T_0 a kölcsönhatás erősségére jellemző állandó.

A nagy T_0 értékek erős kollektív dinamikát jeleznek. Ilyen értelemben szükséges a mágneses viselkedés elemzése a kollektív dinamika szempontjából és a fázisátmenet létének a vizsgálata. Ez utóbbi a ξ spin-korrelációs hossz divergenciájával jellemezhető úgy, hogy $\xi/a = (T/T_S - 1)^{-\nu}$, ha $T \rightarrow T_S$ ($T > T_S$), ahol T_S a fázisátmenet hőmérséklete, "a" az egyes momentumok közötti távolság és ν a kritikus exponens. A konvencionális kritikus lassulás szerint a korrelált dinamika miatti τ relaxációs idő a relaxációs hosszal $\tau \sim (\xi/a)^z$ szerint arányos, ahol z a dinamikus kritikus exponens. Így:

$$\tau = \tau_0 \left(\frac{T}{T_S} - 1\right)^{-z\nu}.$$

2.3 Relaxációs jelenségek szupravezető anyagokban

A fizikának ez a területe igen gazdag szakirodalommal rendelkezik. A tárgyából már nagyon sok bevezető jellegű tankönyv és kézikönyv jelent meg. Az általam ismertetett eredmények közismertek, ezért ebben a fejezetben részletesen nem is foglakozom szakirodalmi utalásokkal. A téma bővebb megismerése céljából három alapművet említek meg: M.Tinkham tankönyvét [25], mely valószínűleg a téma jelenleg legjobb bevezető jellegű tankönyve, Ch.P. Poole lexikonszerű könyvét [26], illetve egy régi, de ma is nagyon hasznos összefoglaló jellegű könyvet [27]. Ezekben az általam ismertetett eredmények részletes megtalálhatók.

A szupravezető állapotot termodinamikai fázisnak tekinthetjük. A normál és szupravezető állapotok közötti átalakulás reverzibilis. A szupravezetők termodinamikáját C.J. Gorter és H. Casimir dolgozták ki. A szupravezető fázis leírásánál a Helmholtz- vagy a Gibbs-féle szabadenergiát használjuk attól függően, hogy mit tekintünk független változóknak. Ha a T hőmérsékletet, a p nyomást és a \mathbf{H} külső teret választjuk független változóknak, akkor a Gibbs-féle szabadenergiát használjuk, amit az F_s szabadenergia és a W mágneses energia összegeként tudunk felírni, a következő alakban:

$$G_s(T, \mathbf{H}_{ext}) = F_s + W = \int f_s(T) dV - \frac{1}{2} \mu_0 \int \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}_{ext} dV,$$

ahol $f_s(T)$ a szabadenergia-sűrűség, \mathbf{m} a minta mágneses dipólmomentum sűrűsége, \mathbf{H}_{ext} a külső térerősség és μ_0 a vákuum mágneses permeabilitása. Az integrálást a minta térfogatára kell végezni. A szupravezető teljes mágneses momentuma $\mathbf{M} = \int \mathbf{m} dV$:

$$\mathbf{M} = - \frac{1}{\mu_0} \frac{\partial G_s}{\partial \mathbf{H}}.$$

Normál állapotban a diamágneses járulékot elhanyagolhatjuk:

$$G_n(T, \mathbf{H}_{ext}) = F_n = \int f_n(T) dV.$$

Szupravezető állapotban \mathbf{B} értéke a szupravezetőn belül 0, kívül pedig $\mu_0\mathbf{H}$. A kritikus tér hőmérsékletfüggése a szupravezető és normál fázis közötti szabadenergia különbség hőmérsékletfüggésére ad felvilágosítást.

$$f_n(T) - f_s(T) = \frac{1}{2} \mu_0 H_c^2(T),$$

ahol f_n ill. f_s a normál ill. szupravezető fázis szabadenergia-sűrűsége.

2.4 A szupravezetők elektrodinamikája

2.4.1 London-elmélet

A London fivérek (Fritz és Heinz) az energiamérleg alapján a következő összefüggést kapták (1933):

$$F_s = \int \left[f_s(T) + \frac{1}{2} \Lambda \mathbf{j}_s^2 \right] dV + \frac{1}{2} \int \left(\frac{1}{\mu_0} \mathbf{B}^2 - \mu_0 \mathbf{H}_{ext}^2 \right) dV,$$

ahol az $\frac{1}{2} \Lambda \mathbf{j}_s^2 = \frac{1}{2} n_s m \bar{v}^2$ tag a „kinetikus” járuléka, \bar{v} a szupravezető elektronok driftsebessége, n_s a szupravezető elektronok sűrűsége, Λ pedig a London állandó. Ebből, ha \mathbf{j} -t a Maxwell-egyenletből behelyettesítjük, \mathbf{B} variálásával kaphatjuk meg a London-egyenletet:

$$\Lambda \cdot \text{rot } \mathbf{j}_s = -\mathbf{B}.$$

A London fivérek által kidolgozott modell szerint a szupravezető egy „diamágneses atom”, melyet a London-egyenlet ír le. Az $x > 0$ félfertet kitöltő szupravezetőt z tengely irányába mutató $\mathbf{B}(0;0;B_z)$ mágneses térbe helyezve, – a Maxwell-egyenleteket is felhasználva – a következő egyenlet adódik:

$$B_z(x) = B_z(0) \cdot e^{-x/\lambda_L},$$

ahol $\mu_0 \lambda_L^2 = \Lambda$. Ez azt jelenti, hogy a mágneses tér exponenciálisan csökkenve behatol a mintába (λ_L a behatolási mélység, tipikus értéke 10^{-7} – 10^{-8} m). Coulomb-mértékben ($\text{div } \mathbf{A} = 0$) a London-egyenlet egyszerűen összefüggő szupravezetőre:

$$\Lambda \mathbf{j}_s(\mathbf{x}) = -\mathbf{A}(\mathbf{x}).$$

Ha ezt az egyenletet összevetjük az elektromos áram kvantummechanikai kifejezésével, megkapjuk a London-állandót:

$$\Lambda = \frac{m}{n_s e^2},$$

ahol m illetve e az elektron tömege és töltése.

A normál és szupravezető fázisok közötti egyensúly a fázishatár virtuális elmozdulásának vizsgálatával kapható meg:

$$f_s - f_n = -\frac{1}{2} \Lambda j_c^2.$$

Vastag mintákra: $\lambda_{Lj_s} = H$ (H a szupravezető felületével párhuzamos). A behatolási mélységhez közeli méretű mintáknál a Meissner-effektus nem lesz teljes, azaz a felszínen $\lambda_{Lj_s} < H$. Mágneses szuszceptibilitás mérések (*D. Shoenberg, 1939*) jó egyezést mutatnak a London-elmélettel.

A London-elmélet az I. típusú szupravezetők leírására nem alkalmas, mert a szupravezető-normál fázishatár felületi energiájára negatív értéket ad. Negatív felületi energia a szupravezető fázist instabillá tenné és a minta szupravezető-normál tartományokra szakadna. Ez pedig H_c -nél nagyobb mágneses térnél is lehetővé tenné a szupravezetést. Ezért H . London egy járulékos, nem mágneses eredetű pozitív felületi energia tagot is feltételezett. Ha a két energiataj összege pozitív, a szupravezető állapot stabil, ha viszont negatív, a mágneses tér behatolhat, mint azt a II. típusú szupravezetőknél tapasztalhattuk.

2.4.2 Ginzburg-Landau elmélet

Rendparaméter

L.D. Landau és *V.L. Ginzburg* vezette be 1950-ben a rendparaméter fogalmát a szupravezetéssel kapcsolatban. A rendparaméter komplex mennyiség: $\Psi = |\Psi| e^{i\varphi}$, az m^* tömegű és e^* töltésű szupravezető töltéshordozók makroszkópikus hullámfüggvényének tekinthető (φ a hullámfüggvény fázisa), úgy normálva, hogy $n_s = |\Psi|^2$, ahol n_s a töltéshordozók sűrűsége. A szabadenergiára Landau és Ginzburg a következő kifejezést vezette be:

$$F_s[\Psi, \Psi^*, T, \mathbf{B}] = \int f_s(\Psi, \Psi^*, T) dV + \frac{1}{2} \int \left(\frac{1}{\mu_0} \mathbf{B}^2 - \mu_0 \mathbf{H}_{ext}^2 \right) dV,$$

ahol az f_s szabadenergia-sűrűség alakja (a mérték-invariancia figyelembevételével):

$$f_s = a(T)|\Psi|^2 + \frac{1}{2}b(T)|\Psi|^4 + \frac{1}{2m^*} |-i\hbar\nabla\Psi - e^*\mathbf{A}\Psi|^2,$$

$$\text{ahol } a(T) \begin{cases} < 0, \text{ ha } T < T_c \\ > 0, \text{ ha } T > T_c \end{cases}; b(T) > 0.$$

A vektorpotenciált $\mathbf{B}=\text{rot}\mathbf{A}$ és $\text{div}\mathbf{A}=0$ egyenletek határozzák meg. Az F_s függvény Ψ^* szerinti variálásával kapjuk a Ginzburg-Landau (GL) egyenletet Ψ -re:

$$a\Psi + b|\Psi|^2\Psi + \frac{1}{2m^*} (-i\hbar\nabla - e^*\mathbf{A})^2\Psi = 0,$$

illetve \mathbf{A} szerinti variálással \mathbf{j}_s -re:

$$\mathbf{j}_s = -i\hbar \frac{e^*}{2m^*} (\Psi^* \nabla \Psi - \Psi \nabla \Psi^*) - \frac{e^{*2}}{m^*} \Psi^* \Psi \mathbf{A}.$$

Nulla mágneses térben a rendparaméter abszolút értékének négyzetét, ami az n_0 töltéshordozók sűrűségével azonos, a GL egyenlet együtthatóinak aránya határozza meg.

$$|\Psi|^2 = n_0 = -\frac{a}{b}.$$

A szabadenergia-sűrűségek különbsége:

$$f_n - f_s = \frac{1}{2} \mu_0 H_c^2 = \frac{a^2}{2b}.$$

Behatolási mélység , koherencia hossz

A Ginzburg-Landau elmélet a London elméletet határesetként tartalmazza. Kis mágneses térben Ψ közelítőleg állandó és a szupravezetőben a mágneses tér csökkenését jellemző λ -ra a London-kifejezés így néz ki:

$$\mu_0 \lambda^2 = \frac{m^*}{n_0 e^{*2}}.$$

A másik karakterisztikus távolság a ξ koherencia hossz, mely Ψ változását írja le 0 mágneses térben:

$$\xi^2 = \frac{\hbar^2}{2m^* |a|}.$$

λ , ξ és H_c kapcsolatát a következő egyenlet írja le:

$$\mu_0 H_c = \frac{\hbar}{\sqrt{2} e^* \xi \lambda}.$$

A GL egyenletek megoldása nagyban függ az úgynevezett Ginzburg-Landau paramétertől, $\kappa = \lambda/\xi$. Ha $\kappa=1/\sqrt{2}$, a felületi energia éppen nulla. Ha κ értéke ennél kisebb, pozitív felületi energia adódik. Ezek az I. típusú szupravezetők. $\kappa > 1/\sqrt{2}$ esetben pedig negatív. A negatív felületi energia miatt energetikailag kedvezőbb a normál fázis beépülése a szupravezető fázisba, mely fluxusfonalak (örvények) formájában meg is történik (II. típusú szupravezetők).

2.4.3 I. típusú szupravezetők

$\xi > \lambda$ ($\kappa \ll 1$) esetben a határfelületen pozitív felületi energia adódik, az ilyen anyagokat I. típusú szupravezetőknek hívjuk. Jellemző rájuk, hogy mágneses térbe helyezve teljesen kitaszítják magukból a mágneses teret, vagyis tökéletes diamágnesként viselkednek. Az, hogy a mágneses tér bekapcsolása a lehűtés előtt vagy után történt, nem befolyásolja a jelenséget. A fluxus kiszorítása a szupravezető belsejéből nem teljes, még a tiszta egykristályokban is marad valamennyi fluxus a mintában. A befagyott fluxus értéke a rácshibák számától függ, azok számával nő. Ezen jelenség részletesebb vizsgálata vezetett a II. típusú szupravezetők felfedezéséhez.

2.4.4 II. típusú szupravezetők

Ha $\lambda > \xi/\sqrt{2}$, akkor a határfelületi energia negatív, így a szupravezető állapotban lévő anyag számára energetikailag kedvezőbb az, ha vékony szupravezető-normál rétegek alakulnak ki benne. Ezt az esetet A. A. Abrikoszov vizsgálta. Bebizonyította, hogyha a külső mágneses tér csökken, egy jól meghatározott értéknél, a

$$H_{C2} = \sqrt{2\kappa}H_C, \text{ vagy } \mu_0 H_{C2} = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2}$$

felső kritikus térnél másodfajú fázisátalakulás történik. A rendszer normál állapotból fluxus-rács állapotba kerül, ahol minden rácspont egy ϕ_0 fluxuskvantumot tartalmaz. Tovább csökkentve a teret, ez a fázis a H_{C1} alsó kritikus térig megmarad, majd ennél kisebb terekben a rendszer Meissner-állapotba megy át. $\kappa \ll 1$ esetben:

$$H_{C1} \cong H_C \frac{\ln(1,08\kappa)}{\sqrt{2\kappa}}.$$

Tehát a II. típusú szupravezetőkben $H_{C1} < H < H_{C2}$ esetén energetikailag kedvezőbb az, ha minél több szupravezető-normál határfelület van, ezért a tér

úgynevezett Abrikosov-örvényfonalak formájában behatol az anyagba. A fluxusrácsot kísérletileg Abrikosov elméleti munkája után tíz évvel később 1967-ben U. Essmann és H. Träube mutatták ki.

2.4.5 Elemi fluxuskvantum

Ha egy szupravezető gyűrűt mágneses tér jelenlétében hűtünk T_c alá, majd a teret kikapcsoljuk, a mágneses tér „befagy” a gyűrűbe. A Maxwell-egyenletek értelmében az elektromos térerő gyűrű mentén vett vonalintegráljának egyenlőnek kell lennie a gyűrű felületén átmenő fluxus idő szerinti differenciálhányadosával. Szupravezető állapotban a gyűrű térfogatában az \mathbf{E} értéke zérus, így a fluxus a gyűrű nyílásában nem változhat meg.

Kimutatható, hogy a befagyott fluxus értéke nem lehet tetszőleges, csak egy bizonyos fluxus alapegység, az elemi fluxuskvantum egész számú többszöröse lehet: $\Phi = n\Phi_0$, ahol $\Phi_0 = h/e^*$ az elemi fluxuskvantum, n pedig természetes szám. A kísérletek szerint $e^* = 2e$, így $\Phi_0 = h/2e = 2,068 \cdot 10^{-15}$ Wb. A fluxus kvantáltságát kísérletileg *Deaver* és *Fairbank* amerikai, ill. *Doll* és *Näbauer* német kutatók mutatták ki 1961-ben.

Az Abrikosov-féle örvényfonal mágneses fluxus értéke csak a $\phi_0 = h/2e$ nagyságú elemi fluxuskvantum egész számú többszöröse lehet. Termodinamikai szempontból az a legelőnyösebb, ha egy örvényfonalban csak egy ϕ_0 nagyságú fluxus van becsapdázódva. A külső mágneses tér behatolását jellemző $\lambda(T)$ behatolási mélység miatt az örvényfonal mágneses fluxusának legnagyobb része a ξ koherencia hosszal jellemzett örvényfonal átmérőn kívül helyezkedik el.

2.4.6 Örvényszálak taszítása

Elektrodinamikából ismert, hogy egy \mathbf{J} elektromos áramsűrűség és \mathbf{B} mágneses tér közötti kapcsolatot leíró Lorentz-erő sűrűségét a következőképpen írhatjuk fel:

$$\mathbf{f} = \mathbf{J} \times \mathbf{B} .$$

Két örvényszál között fellépő erőt úgy tekinthetjük, mint az egyik örvényszál belsejében található \mathbf{J} áramsűrűség és a másik örvényszál első örvényszál helyén fellépő \mathbf{B} mágneses tér között fellépő kölcsönhatást. Feltesszük, hogy mindkét örvényszál végtelen hosszú, hengersizmetrikus és párhuzamosan helyezkednek el egymástól d távolságra. Minthogy \mathbf{f} az egységnyi térfogatra jutó erőssűrűség, a teljes \mathbf{F} erőt ezen erőssűrűségnek a \mathbf{B} -t tartalmazó térre való kiintegrálásával kapjuk meg:

$$\mathbf{F} = \int \mathbf{J} \times \mathbf{B} r dr d\phi dz.$$

Mivel z függés nincs, ezért elegendő egységnyi hosszra vizsgálni az erőt.

$$\mathbf{F}/L = \int \mathbf{J}(r') \times \mathbf{B}(r) r dr d\phi,$$

ahol L a hosszúság és $r' = (r^2 + d^2 - 2rd \cos \phi)^{1/2}$.

Nagy $\kappa = \lambda/\xi$ közelítésben azt kapjuk, hogy:

$$F/L = \frac{\Phi_0^2}{4\pi^2 \mu_0} \int K_0\left(\frac{r}{\lambda}\right) K_1\left(\frac{r'}{\lambda}\right) r dr d\phi,$$

ahol $K_0(r/\lambda)$ a nulladrendű, $K_1(r/\lambda)$ pedig az elsőrendű módosított Bessel-függvények.

A módosított Bessel-függvények a következőképpen viselkednek kis radiális távolság esetén, vagyis, ha $r \ll \lambda$

$$K_0\left(\frac{r}{\lambda}\right) \approx \ln\left(\frac{1.123\lambda}{r}\right) \quad \text{és} \quad K_1\left(\frac{r}{\lambda}\right) \approx \frac{\lambda}{r}.$$

Nagy radiális távolság, $r \gg \lambda$ esetén pedig:

$$K_0\left(\frac{r}{\lambda}\right) \approx \frac{\exp(-r/\lambda)}{(2r/\pi\lambda)^{1/2}} \quad \text{és} \quad K_1\left(\frac{r}{\lambda}\right) \approx \frac{\exp(-r/\lambda)}{(2r/\pi\lambda)^{1/2}}.$$

Ha az örvények elég messze helyezkednek el egymástól, az áramsűrűséget konstansnak tekinthetjük:

$$\mathbf{F}/L = \mathbf{J}(d) \times \int \mathbf{B}(r) r dr d\phi.$$

Ha a mágneses indukciót integráljuk egy örvény teljes területére, a Φ_0 fluxoidot kapjuk:

$$\mathbf{F}/L = \mathbf{J} \times \Phi_0.$$

A $\mathbf{J}(d)$ -re vonatkozó formulák felhasználásával és az $r \gg \lambda$ közelítést használva, azt kapjuk, hogy:

$$F/L = \frac{\Phi_0^2}{2\mu_0 (2\pi\lambda^5)^{1/2}} \frac{\exp(-d/\lambda)}{\sqrt{d}} ; d \gg \lambda.$$

Ez az erő taszító jellegű, vagyis a párhuzamos örvényszálak taszítják egymást. Az örvényszálak között fellépő taszító erő miatt az örvény rendszer egy szabályos rácsszerkezetet alkot, ami lehet négyyszög vagy háromszögrács. Energetikailag kedvezőbb, ha az örvényszálak szimmetrikus háromszögrácsban helyezkednek el.

A külső mágneses tér növelésével az elrendezés jellege változatlan marad, de az örvények közti távolság fokozatosan csökken. Ha a mágneses tér olyan nagy, hogy az örvényszálak közötti távolság $\xi(T)$ -re csökken, megszűnik a szupravezető állapot. Ez a H_{c2} felső kritikus tér. Ha az örvények szabadon tudnak mozogni az anyagban a mágneses tér változásakor, a mágnesezési görbe reverzibilis.

2.4.7 Örvényszálak mozgása és energia disszipáció

Reverzibilis szupravezetők esetében akármilyen kis áramot is viszünk keresztül a mintán, a fluxus rács mindig mozgásba jön a transzport áram által létrehozott Lorentz-erő miatt. A fluxus mozgása pedig az örvényszálak normál állapotú magjai miatt energia disszipációt jelent, így a mintán feszültség jelenik

meg. Ezért az ideális II. típusú szupravezetők kritikus árama $H > H_{c1}$ esetén mindig nulla.

A valós szupravezető rendszerekben fluxus rögzítő centrumok, úgynevezett pinning centrumok találhatók. Ezek általában kristályhibák és szennyeződések. A kristályhibák helyén az örvényszálak elhelyezkedése energetikailag kedvezőbb, mint azok környezetében. Így az örvények szabad mozgása nem érvényesül és a rendszer a mágnesezése során nem egyensúlyi állapotokon megy keresztül. A kísérletek tanulsága szerint a görbék reverzibilitása nő a minták hőkezelésének idejével. Vagyis a rögzítő centrumok a kristályhibákkal hozhatók kapcsolatba. Ha a külső mágneses tér közelíti a felső kritikus értéket, akkor a minta mágnesezettsége nullára csökken, mivel a fluxust rögzítő erők eltűnnek.

A pinning centrumok a legtöbb esetben véletlenszerűen helyezkednek el az anyagban, az örvényfonalak pedig kötegekben mozognak. Az örvénykötegekre ható rögzítő erőket egy potenciáltérrel jellemezhetjük. A potenciáltér valamely lokális minimumhelyén lévő örvényköteg hőmérsékleti egyensúlyban van egyrészt a többi fluxus köteggel, másrészt a kristályráccsal. Ennek megfelelő hőmérsékleti rezgést végez. A termikus mozgás során előfordulhat, hogy egy fluxus köteg akkora energiára tesz szert, amellyel le tudja győzni a rögzítő potenciálfalat és a szabaddá vált örvényszálak mozoghatnak. Az örvényszál mozgása energia disszipációval jár.

Ha a minta mágneses térben van és rajta elektromos áram folyik át (akár transzportáram, akár fluxus gradiens miatt fellépő áram), akkor az örvényfonal egységnyi darabjára ható Lorentz-erőt $\mathbf{f}_L = \mathbf{J}_T \cdot \Phi_0$ módon számoljuk ki. Ennek hatására a pinning potenciáltérre egy lejtő szuperponálódik, amelynek meredeksége arányos az áram nagyságával. Ez azt jelenti, hogy a Lorentz-erővel ellentétes oldalon az energiakorlát $U + Bjlsa$ -ra növekszik, vele egy irányban pedig $U - Bjlsa$ -ra csökken (B a mágneses tér nagysága, j a transzportáram sűrűség, l a fluxus köteg hossza, s ennek a keresztmetszete, U és a a potenciálgát átlagos magassága és szélessége). A rögzítő centrumok, vagy más szóval a pinning potenciáltér, hatását egy átlagolt f_p pinning-erővel jellemezhetjük.

Az f_p rögzítő erő és az f_L Lorentz-erő aránya, továbbá a transzportáram által meghatározott $\Delta W = Bjlsa$ és a termikus fluktuációt jellemző $k_B T$ mennyiségek aránya alapján három esetet különböztethetünk meg:

◆ Ha $f_L < f_p$ és $\Delta W < k_B T$, termikusan aktivált fluxusmozgás (Thermally Activated Flux Flow, TAFF) jellemzi a rendszert. Ebben az esetben a

transzportáram olyan kicsi, hogy az örvényszálak a potenciálgödörből csak hőmozgás hatására kerülhetnek ki. A kiszabadult örvényfonalak mozgását aztán már természetesen a Lorentz-erő határozza meg. Meg kell jegyeznünk, hogy hagyományos szupravezetőknel ez az effektus elhanyagolható, mivel ott $U \gg k_B T$. A magas átmeneti hőmérsékletű szupravezetőknel azonban $U \sim k_B T$, így ez a jelenség megfigyelhető.

♦ Ha $f_L < f_p$ és $\Delta W > k_B T$, az örvények fluxus csúszással (flux-creep) mozognak az anyagban. A transzportáram értéke még mindig kicsi ahhoz, hogy önállóan kiszabadítsa az örvényszálakat, de elég nagy ahhoz, hogy a termikus aktivációk segítségével ez sikerüljön.

♦ $f_L > f_p$ esetben a fluxusfolyás (flux-flow) állapot következik be. Ekkor az áram értéke olyan nagy, hogy a Lorentz-erő nagysága eléri a pinning-erő értékét. Az $f_L = f_p$ egyenlőség által meghatározott kritikus áramsűrűség, a $j_c = U / (B l s a)$ értéknél nagyobb áramsűrűség esetén az örvények akadálytalanul mozoghatnak az anyagban. Ez egyúttal azt is jelenti, hogy a kritikus áramsűrűség növelése csak a pinning-erő növelésével valósítható meg. A kiszabadult örvényfonalak mozgását az $\eta v_L = f_L - f_p$ egyenlet határozza meg, ahol v_L az örvényfonalak sebessége, η pedig a közeg viszkozitási együtthatója. Flux-flow állapotban a differenciális ellenállás független a pinning-erőtől, értékét a minta normál állapotú ellenállása határozza meg. A mozgó örvények elektromos teret keltenek, vagyis a szupravezető mintán feszültség esik. Az elektromos tér értéke: $E_0 = n v_L \Phi_0 = v_L B$, ahol n a felületegységenként v_L sebességgel mozgó örvények száma. A fluxus mozgás természetesen mind a csúszás, mind a TAFF tartományában szintén energia disszipációval jár, de a mintán megjelenő feszültség sokkal kisebb, mint folyás esetében.

Fluxusmozgás típusa	Jellemző összefüggések	E - j kapcsolat
TAFF $U \approx k_B T, \Delta W \ll k_B T$	$\rho_{\text{TAFF}} \sim \exp(-U/k_B T)$ $j < j_0 k_B T/U$	lineáris
Flux Creep $U - \Delta W > k_B T$	$\rho \sim \exp[(j/j_{c0}-1)k_B T/U]$ $j \approx j_{c0}$	nem lineáris
Flux Flow $U \leq W$	$\rho_{\text{FF}} \rho_n H/H_{C2}(T)$ $j > j_{c0}$	lineáris

1. táblázat.

A szupravezetőkben lejátszódó legfontosabb disszipációs folyamatok.

2.5 Bean-modell

Az irreverzibilis szupravezetők viselkedését a Bean-modell alapján lehet megérteni. Eszerint, ha a minta kevert állapotban van, akkor a rögzítő centrumok miatt egy fluxus gradiens fog kialakulni a mintában, úgy, hogy a fluxus sűrűség a minta közepe felé haladva csökken. Ha növeljük a külső mágneses teret, akkor az örvényfonalak beljebb hatolnak a mintába oly módon, hogy a fluxus gradiens értéke nem változik. Megszüntetve a külső mágneses teret, a pinning-centrumok miatt megmarad a fluxus-gradiens. A fluxus-gradiens jelenléte az anyagban a $\text{rot}\mathbf{H} = \mathbf{j}$ Maxwell-egyenletnek megfelelően a mintában köráramot indukál. Ezen köráramok nagysága a Bean-modell szerint pontosan akkora, hogy a $\text{rot}\mathbf{H} = \mathbf{j}$ áramsűrűség megegyezik a j_c kritikus áramsűrűséggel.

A Bean-modell egyik alapfeltevése az, hogy a fluxus gradiens miatt fellépő áramsűrűség megegyezik a kritikus áramsűrűséggel, valamint az, hogy az örvényszerkezet stabil, nincs fluxus csúszás (flux creep) és hogy az alsó kritikus tér értéke zérus. Feltesszük továbbá, hogy az áramsűrűség lineárisan csökken a minta felületétől mért távolsággal. Tudjuk azt is, hogy $\text{rot}\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j}$, ahol \mathbf{B} a mágneses indukció T - ban, J_c a kritikus áramsűrűség A/m² - ben, μ_0 pedig a mágneses permeabilitás. Ha a minta lokális mágneses térerőssége $H_i = B/\mu_0$, a lokális mágnesezettség $M_i = H_i - H$ alakú, ahol H a külső mágneses térerősség.

Így a minta teljes M mágnesezettségét az egyes keresztmetszetekhez tartozó M_i -k átlaga adja.

A mágnesezettséget a $0 < H < H^*$ és $H^* < H$ esetekben vizsgáljuk, ahol H^* azt a külső tér értéket jelent, amelynél a belső tér eléri a minta közepét (a minta közepén a tér értéke nagyobb lesz, mint nulla). Végtelen minta esetében a kezdeti mágnesezettségi görbe úgy fog kinézni, hogy :

$$M(H) = -H + H^2 / 2j_c a \quad , \text{ ha } 0 < H < H^*$$

$$M(H) = -J_C a / 2 \quad , \text{ ha } H^* < H.$$

A mágnesezettségi görbe nagy H_m -ek esetén:

$$M(H) = -J_C a / 2 + H_m - H - (H_m - H)^2 / 4j_c a \quad , \text{ ha } H_m - 2H^* < H < H_m$$

$$M(H) = J_C a / 2 \quad , \text{ ha } -H_m < H < H_m - 2H^* ,$$

ahol H a külső mágneses tér nagysága, H_m ennek maximális értéke, a pedig a minta szélességének a fele. Így a minta kritikus áramsűrűsége meghatározható a Bean-modell segítségével. Amikor H_m nagyobb mint $2H^*$, akkor a J_C a következő módon függ az M mágnesezettségtől : $M(H)^+ - M(H)^- = J_C a$.

J_C meghatározható a hiszterézis görbe szélességének a mérésével, egy adott tér esetén.

3 Kísérleti vizsgálati módszerek

Mágneses anyagok relaxációs jelenségeinek vizsgálatára három mérési módszert használtam. Mértem a különböző módon előállított termodinamikai állapotokhoz tartozó sztatikus (DC) mágnesezettség hőmérséklet és idő függését, gyors lemágnesezés időbeli hatását, valamint különböző frekvenciákon a váltóáramú (AC) komplex szuszceptibilitást a hőmérséklet és mágneses tér függvényében.

A DC mágnesezettség és az audiokfrekvenciás AC szuszceptibilitás mérése egy Cryogenic gyártmányú, klasszikus elrendezésű folyékony héliumos kriosztátból és egy maximálisan 8.5 T mágneses teret előállító szupravezető mágnesből álló mérőrendszerben történt. A méréseket a laboratórium saját fejlesztésű rezgőmintás magnetométerével és AC szuszceptométerével végeztük el. A rezgőmintás magnetométer technikai leírása, kalibrálása a diplomamunkám témája is volt [28]. A mérések folyamán rögzítettük a mágnesezettség

(1) mágneses tértől való függését állandó hőmérsékleteken;

(2) hőmérséklettől való függését állandó mágneses térben úgy, hogy a kezdeti állapotot kétféle módon is előállítottuk: vagy abban a mágneses térben hűtöttük le a mintát a kiindulási hőmérsékletre, amelyben a mérés történt (angol szakirodalomban elfogadott rövidítés szerint ez az FC típusú hűtés), vagy nulla térben (ez a ZFC hűtés);

(3) időbeli változását egy adott állapot preparálása után (az $M(t)$ -t függvényt). A relaxációs folyamatok tanulmányozására ez a módszer a legkézenfekvőbb eljárás. A klasszikus szupravezető mágnessel felszerelt berendezésünkkel csak a lassúbb folyamatokat tudtuk tanulmányozni, a gyors relaxációt jellemző $dM(t)/dt$ függvényeket külön erre a célra kifejlesztett kriosztát/mágnes rendszerbe beépített nagyfrekvenciás (9,1 MHz) szuszceptométerrel vizsgáltuk. A felsorolt mérési módszerek és eljárások közül a nagyfrekvenciás szuszceptométerrel egybeépített, gyors lemágnesezésre is alkalmas különleges mérőrendszer kidolgozása volt a feladatom, ezért dolgozatomban részletesen erről számolok be.

3.1 Gyors lemágnesezésre is alkalmas mágnes/kriosztát rendszer kidolgozása

A gyorsan változó mágneses folyamatok vizsgálatához szükséges egy olyan rendszer, melyben a mágneses teret rövid idő alatt lehet változtatni. A mágneses tér gyors változása Lenz törvénye értelmében intenzív feszültség indukciójával jár. Ezért erre mind a mágneses teret előállító rendszert, mind az alacsony hőmérsékleti kriosztátot elő kell készíteni.

3.1.1 A mágnes

A mérések során elsődleges fontosságú volt az, hogy az általunk alkalmazott külső mágneses teret a lehető leggyorsabban tudjuk megváltoztatni. Ennek a feltételnek a többi méréshez használt kriosztátban lévő szupravezető mágnes nem felelt meg, hiszen szupravezető mágnesről lévén szó igen nagy induktivitással rendelkezik, ami miatt csak viszonylag lassan lehet a mágneses tér nagyságát megváltoztatni. Ezért merült fel az igény egy új mágnes elkészítésére.

A mágnes tervezésekor a következő feltételeket kellett figyelembe venni:

Geometriai feltételek:

- A belső átmérője nem lehet kisebb, mint a méréshez használt kriosztát külső átmérője.
- Geometriai méreteit meghatározza az is, hogy a tekercs geometriai középpontjának a kriosztát egy adott pontjára kell esnie és ugyanakkor illeszkednie kell a berendezés egyéb geometriai méreteihez is.

A mágneses térrel szemben állított követelmények:

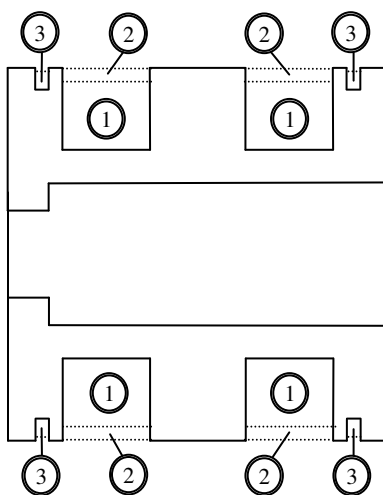
- Az előállított mágneses tér homogenitása jó legyen.
- Minél nagyobb legyen a térerő.
- A mágneses tér megváltoztatásának a sebessége minimum 1 T/s legyen.

Ha homogén és erős mágneses teret akarunk előállítani, akkor a lehető leghosszabb vezetékkel kell használnunk szolenoid elrendezésben. Ez egyúttal azt

is jelenti, hogy az így elkészített tekercs inductivitása nagy. Ha viszont arra törekszünk, hogy minél gyorsabban meg tudjuk változtatni a mágneses teret, akkor a lehető legkisebb inductivitású tekercset kell elkészítenünk a legrövidebb vezeték felhasználása mellett. Ezt az ellentmondást a Helmholtz-konfiguráció alkalmazásával oldottuk fel. A Helmholtz-konfiguráció olyan két tekercsből álló elrendezés, melyek középtátmérője megegyezik a tekercs párok középsíkjai távolságának a kétszeresével. A Helmholtz-tekercs középsíkjában a mágneses tér homogén.

Az általam tervezett és megvalósított tekercs-elrendezés végleges konfigurációja a következőképpen néz ki:

- A csévetest anyaga kemény műanyag, geometriai adatai a 4. ábrán láthatóak.
- A tekercsrendszer három tekercs párból áll. Az egyes tekercs párok elnevezései:
 1. főtekercs, 2 mellétekercs, 3 simító tekercs.



4. ábra.

A mérésekhez használt tekercsrendszer elvi elrendezése.

Geometriai adataik:

	Főtekeres pár	Melléktekeres pár	Simító tekeres pár
Belső átmérő	180 mm	295,5 mm	270 mm
Külső átmérő	294,9 mm	300,2 mm	297,5 mm
Menetszám (külön-külön)	906	116	134 m
Vezeték átmérő	2 mm	1 mm	1 mm
Vezeték hossz (külön-külön)	675,9 m	108,5 m	119,4 m
Elrendezés (oszlop×sor)	30 × 30	2 × 58	10 × 13

2. táblázat.

A tekeres párok geometriai adatai.

A tekeresek által a geometriai középpontban létrehozott mágneses tér nagyságát, az egyes tekeres párok egyenáramú ellenállásait és induktivitásait az alábbi táblázat tartalmazza:

	Mágneses térerősség (Gauss/Amper)	Ellenállás (Ohm)	Induktivitás (mH)
Főtekeres pár	62,928	7.653	457
Melléktekeres pár	7,365	4.958	14.3
Simítótekeres pár	5,573	5.415	21.6

3. táblázat.

A tekeres párok elektronikai adatai.

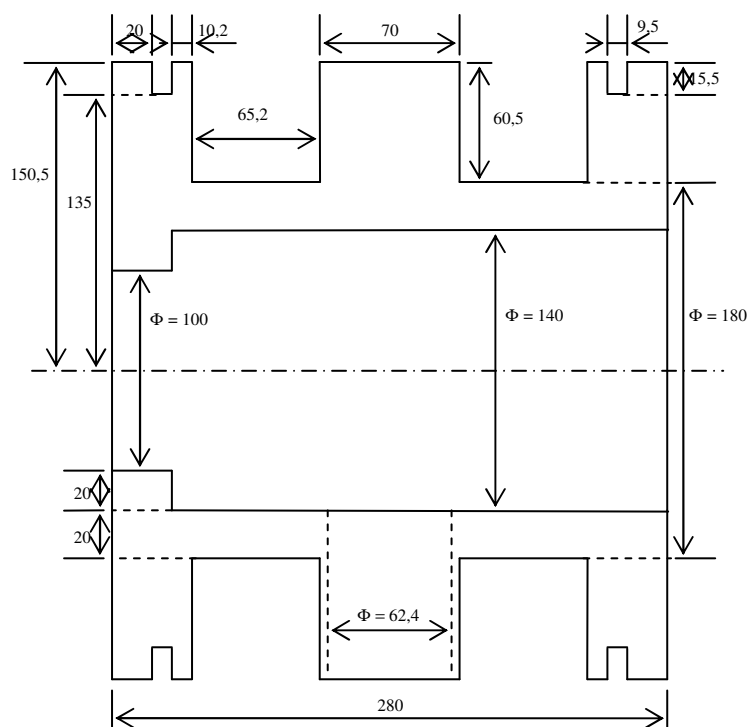
A tekercs párok által létrehozott mágneses tér homogenitását is meghatároztuk a geometriai középpontban levő r sugarú, $2h$ magasságú hengeres térrészre vonatkoztatva. Ez abból a szempontból lényeges, hogy a minta mágneses momentumának meghatározásához szükséges mintamozgatás során (később még részletesen beszélek erről) a mágneses tér értéke a minta különböző geometriai pozícióiban ne változzon.

	Homogenitás	r (mm)	h (mm)
Főtekercs	< 0,01 %	5	3
	< 0,1 %	13	9
	< 1 %	33	27
Mellétekercs	< 0,01 %	3	3
	< 0,1 %	13	10
	< 1 %	46	28
Simító tekercs	< 0,01 %	3	2
	< 0,1 %	7	7
	< 1 %	22	16

4. táblázat.

A tekercsek által létrehozott mágneses tér homogenitása.

A gyors mágneses tér változást külön erre a célra kifejlesztett tápegység segítségével tudjuk elérni. A tápegység tervezésekor fő szempont volt, hogy legalább 10 A kimenő egyenáramot biztosítson 40 V feszültség mellett, továbbá a térváltozással járó 500 V indukált feszültséget a kimenő fokozat 'kezelní' tudja. A tápegység megtervezése és megépítése nem az én feladatom volt, ezért részleteinek ismertetése nem képezi a dolgozatom tárgyát.



5. ábra.

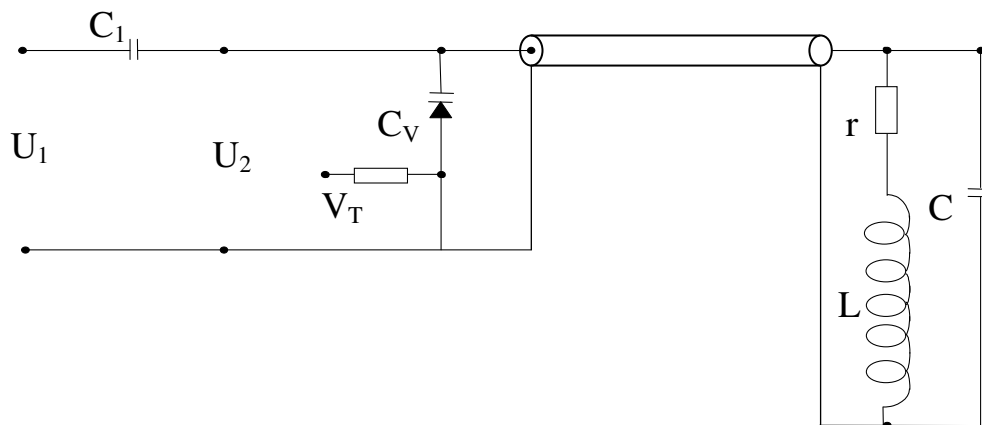
A mágnes csévetestének pontos geometria adatai mm-ben.

3.1.2 Alacsonyhőmérsékleti kriosztát

A kriosztáttal szemben támasztott követelmények egyike szintén a mágneses tér gyors változásához kapcsolódik. A kriosztátnak az a része, mely a mágnes közepében van, nem tartalmazhat fém alkatrészt, mivel az indukált áram mágneses tere jelentősen módosítaná a mágneses térnek mind az időbeli lefolyását, mind a térbeli eloszlását. Ezért a kísérletek szükségessé tették, hogy egy már rendelkezésünkre álló, előzőleg biológiai mérésekhez használt, BMD-5 típusú műanyag kriosztátot átalakítsunk mérési céljainkra. Ez a kriosztát egy 5 literes kettős falú edény, nem igényel cseppfolyós nitrogénes hűtést. Hőszigetelését szuperszigeteléssel oldották meg, mely alumínium és üvegszövet fóliák alkotta szigetelő réteg. Mérési elrendezésünk szempontjából az alumínium fóliák okozták a problémát, melyek eltávolítása elengedhetetlen volt. Természetesen a beavatkozás következtében a cseppfolyós héliumos kriosztát hőszigetelő képessége drasztikusan leromlott, eredeti értékének 20 %-ára csökkent. Az így módosított kriosztát belsejében a hőmérséklet szabályozásának a lehetőségét is ki kellett dolgoznom. Ezt egy átfolyós kriosztát alkalmazásával sikerült megoldanom: a cseppfolyós hélium tároló edényből a folyadékot egy olyan hőcserélőbe vezetem, melynek belső hőmérséklete szabályozható, a kimeneti csőrendszerét pedig a műanyag kriosztát belsejébe tudtam vezetni. Így a vizsgálandó mintát adott hőmérsékleten tudtam tartani hosszú időn keresztül.

3.2 Rádiófrekvenciás komplex mágneses szuszceptibilitás mérésére kidolgozott mérőrendszer (RF AC szuszceptométer)

A váltakozóáramú (AC) szuszceptibilitás mérésének szokásos módszerei a rádiófrekvenciás tartományban nehézkesen alkalmazhatók a kábeleken fellépő jelentős fázistolások miatt. A minta és a jelfeldolgozó elektronika távolsága szükségképpen legalább néhány deciméter, tekintve, hogy a mintát alacsony hőmérsékleten és mágneses térben kell elhelyeznünk. A rádiófrekvenciás hidak kiegyenlítése is lehetséges, de ez általában hosszú válaszdőhöz vezet. Fenti okokból azt a megoldást választottuk, hogy a mintát egy párhuzamos rezgőkör tekercsének belsejében helyezzük el. A tekercsben folyó áram gerjeszti a vizsgálathoz szükséges rádiófrekvenciás mágneses teret. A minta mágneses momentumának hatását a rezgőkör paramétereinek változása révén detektáljuk. Az RF AC szuszceptométer mérőfejének elvi elrendezése a 6. ábrán látható.



6. ábra.

Az RF AC szuszceptométer mérőfejének elvi elrendezése.

RF AC szuszceptométer a gyakorlatban a következő elemekből áll:

- Tartó cső, melynek anyaga rozsdamentes acél.
- Mérőfej, amely a tartó cső végén helyezkedik el.
- Elektronikai doboz, amelyben a mérés elvégzéséhez szükséges elektronikus eszközök egy része található.

A vezetékek a mérőfejtől az elektronikus dobozig rozsdamentes acél csőben futnak. A mérőfej egy L induktivitásból és C kapacitásból álló párhuzamos rezgőkör és a mérés során ezen rezgőkör fizikai paramétereinek a megváltozását vizsgáljuk. A párhuzamos rezgőkört a C_1 (~4,7 pF) kondenzátoron keresztül közel áramgenerátorosan tápláljuk egy 50 Ohm kimeneti impedanciájú RF generátorral, mely U_1 feszültséget szolgáltat. A rezgőkör veszteségét az L induktivitással sorba kötött r ellenállással vesszük figyelembe. A rezgőkör része a $Z_0=50 \Omega$ hullámellenállású koaxiális kábel és a finomhangolást szolgáló C_v kapacitás, amit 3 db párhuzamosan kapcsolt ún. varicap dióda alkot. Ezekre a diódákra kapcsolt V_T feszültséggel a rezgőkör hangolható. A vizsgálni kívánt minta rádiófrekvenciás komplex szuszceptibilitását úgy határozzuk meg, hogy megmérjük a rezgőkör paramétereit a minta nélkül, majd a tekercsbe behelyezett mintával, s a paraméterekben okozott változásból számítjuk ki. A továbbiakban csak a rezgőkör stacionárius választ vizsgáljuk. Az elektromágneses mennyiségeket mint komplex vektorokat kezeljük. Ha az L induktivitású tekercsben I_L áram folyik, a generált Φ fluxus $\Phi = I_L \cdot L$ nagyságú, a rezgőkör sarkain a mérhető feszültség pedig:

$$U_{rf}^0 = i\omega L I_L.$$

Ha minta is van a tekercsben és a minta jelenléte miatti járulékos fluxus-kapcsolódás Φ_{rf} , a rezgőkör sarkain mérhető feszültség módosul:

$$U_{rf}^m = i\omega L I_L + \frac{d\Phi_{rf}}{dt}.$$

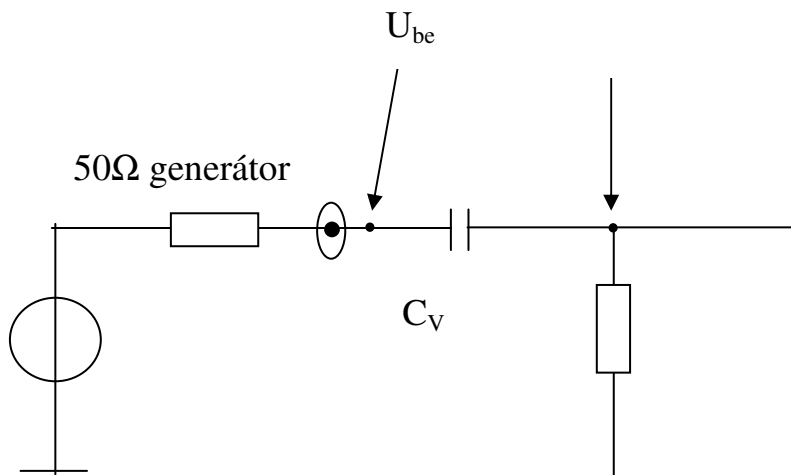
Legyen $H_{rf} = k \cdot I_L$ a tekercsben folyó áram által generált mágneses tér, ahol k a tekercs geometriai alakjától függő állandó, amit numerikus számolással könnyen meghatározhatunk és audiofrekvenciás méréssel ellenőrizhetünk. Ebben a térben a V térfogatú és χ szuszceptibilitású minta $m_{rf} = H_{rf} \chi V$ mágneses momentummal rendelkezik (feltéve, hogy a minta mágnesezettsége homogén és alakja ellipszoid és χ a lemágnesezési faktorról korrigált mágneses szuszceptibilitás). Ez a mágneses momentum megváltoztatja a tekercsben mérhető mágneses fluxust $\Phi_{rf} = m_{rf} \mu_0 \beta$ értékkel, ahol β egy csatolási állandót, mely a tekercs és a minta geometriai paramétereitől, valamint az egymáshoz

viszonyított helyzetüktől függ. Ez a mennyiség is numerikus számítással határozható meg. Tehát a minta bevitele a tekercsbe

$\Phi_{rf} = m_{rf} \mu_0 \beta = \chi k \cdot I_L V \cdot \mu_0 \beta$ mágneses fluxus változást eredményez. Ebből látszik, hogy a β csatolási állandó tisztán valós χ esetén $\beta = k V \mu_0 \beta \chi$ kölcsönös indukciós együttható jellegű mennyiség.

A komplex szuszceptibilitás $\chi = \chi' - i \chi''$ alakját figyelembe véve a fenti összefüggésekből kapjuk, hogy $\delta L = \mu_0 \beta k V \chi'$ és $\delta r = \mu_0 \beta k \omega V \chi''$, vagyis a rezgőköri induktivitás és ellenállás megváltozásának mérésével közvetlenül kaphatunk információt a minta szuszceptibilitására. A mérés technikai feladat tehát ezen két mennyiség folyamatos monitorozása.

A rezgőkör meghajtására szolgáló U_1 feszültség mérését a gerjesztő áram amplitúdójának meghatározására használjuk. Az RF generátor állandó amplitúdójú gerjesztő áramot biztosít, de a párhuzamos rezgőkör által jelentett terhelés a hőmérséklet függvényében változhat. Ezért a tényleges meghajtó áram amplitúdója is, kis mértékben ugyan, de változhat. Az U_1 feszültséggel folyamatosan monitorozzuk a gerjesztő áram amplitúdóját, mivel a rezgőkör r effektív ellenállásának kiszámolásához szükség van az U_1 aktuális értékére. A rezgőkör sarkain mérhető feszültséget U_2 -vel jelöljük. A rezgőkör teljes ohmikus veszteségét az induktivitással sorba kapcsolt r effektív veszteségi ellenállással vesszük figyelembe. A C_V kapacitás a körben lévő varicap típusú dióda kapacitását jelöli, melynek pontos értékét a V_T feszültség segítségével tudjuk beállítani. A V_T feszültséghez tartozó kapacitás értékeket az alábbi eljárás segítségével határoztuk meg: a varicap diódát egy felüláteresztő szűrő kondenzátoraként alkalmaztuk, majd a felüláteresztő szűrő átvitelét leíró karakterisztika felhasználásával meghatároztuk a $C = C(V_T)$ függvényt (7. ábra).



7. ábra.

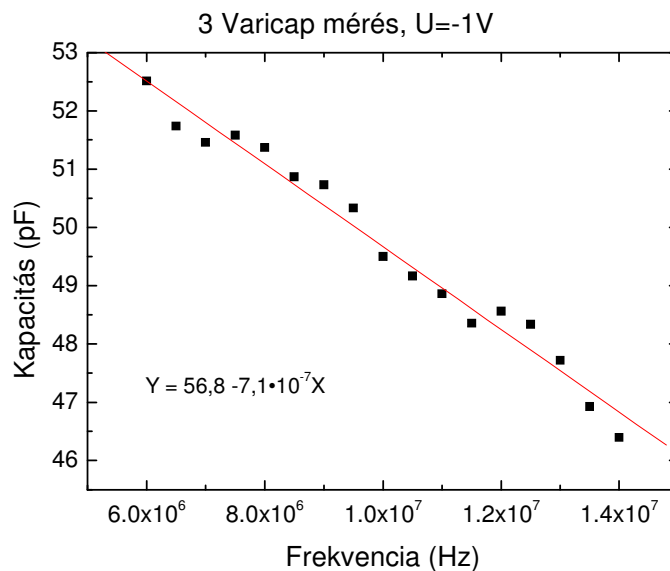
A varicap diódák feszültségfüggő kapacitásának meghatározására kidolgozott mérő elrendezés.

A felüláteresztő szűrő átviteli függvényét a következő összefüggés határozza meg:

$$|A| = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{1}{\omega^2 R^2 C^2}}},$$

ahol ω a váltakozó áramú jel körfrekvenciája, R és C a felüláteresztő szűrő ellenállása és kapacitása. U_{ki} feszültség megadja $|A|$ értékét, melyet adott varicap feszültség $(-1 \div 10)$ V közötti érték) esetén $6 \div 14$ MHz frekvencia értékekre határoztunk meg. Ismerve az átviteli függvényt, továbbá R értékét 50 Ohm-nak tekintve meg tudjuk határozni, hogy egy adott varicap feszültség esetén a frekvencia függvényében hogyan változik a varicap dióda kapacitása. A mérésekből látható, ha a frekvencia függvényében ábrázoljuk a varicap diódák

kapacitását állandó feszültségű előfeszítés mellett, jó közelítéssel egyenest kapunk.



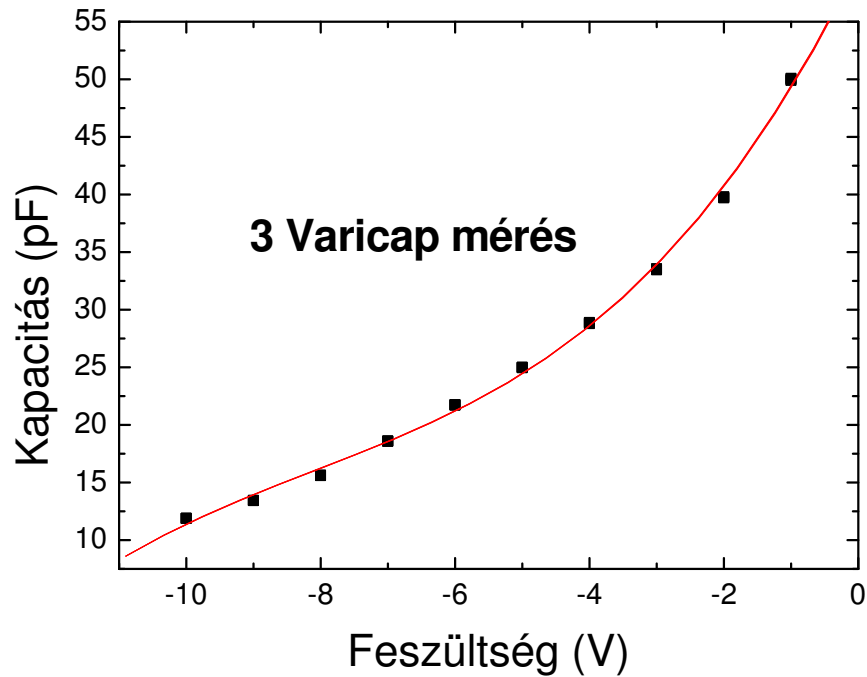
8. ábra.

A 3 db párhuzamosan kötött varicap dióda kapacitása a frekvencia függvényében -1 Volt előfeszítés esetén.

Ezt a mérési sorozatot különböző feszültségekre elvégezve meg tudtuk határozni, hogy egy adott frekvencián az előfeszítő feszültség függvényében hogyan alakul a párhuzamosan bekötött varicap diódák kapacitása. Számunkra jelenleg technikailag biztosított frekvenciatartományban egy 9,5 MHz-es frekvencián üzemelő RF szuszceptométer magvalósítása volt az elérhető cél. Ezért meghatároztuk, hogy 9,5 MHz frekvencián a varicap kapacitása hogyan függ az előfeszítő feszültségtől. A függvényt harmadfokú polinom formában adjuk meg:

$$C_V = 59,99 + 11,78 * V_T + 1,177 * V_T^2 + 0,0485 * V_T^3.$$

A függvény menetét a 9. ábrán szemléltetésképpen ábrázoltuk is.



9. ábra.

A 3 db párhuzamosan kötött varicap dióda kapacitása a feszültség függvényében.

A váltakozó áramú szuszceptibilitás komplex mennyiség. A valós és képzetes része együttesen jellemzi az anyag mágneses tulajdonságait. A nagyfrekvenciás szuszceptibilitás esetében sincs ez másképp. Ezért a mérés célja az, hogy meghatározzuk a minta időben változó mágneses momentumának nagyságát és fázisszögét a külső gerjesztő térhez képest, amelyekből a szuszceptibilitás valós és képzetes részét határozhatjuk meg. Ennek érdekében két feszültség értéket mérünk, az U_1 és U_2 feszültséget. Az U_1 feszültség a rezgőkört meghajtó jel feszültsége, az U_2 feszültség pedig a rezgőkör sarkain

mért feszültség (a 6. ábrán feltüntetett elvi mérési elrendezésen mindkét értéket jelöltük).

Az U_1 feszültséget tekintjük a referencia jelnek, az U_1 és U_2 jel fázisa közti különbséget tekintjük a mért jel fázisszögének. Technikailag a nagy frekvencia miatt az U_1 és U_2 -t direkt módon nem egyszerű megmérni. Ezért a nagyfrekvenciás erősítővel feldolgozott jeleket külön-külön összeszorozzuk egy másik, a nagyfrekvenciás jel frekvenciájától kissé különböző frekvenciájú jellel és a eredményként előálló különbségi frekvenciájú jeleket értékeljük ki. Matematikailag ez az alábbi módon írható le:

A referencia jelet szolgáltató U_1 jel esetében

legyen a referencia jel $A \sin(\omega_1 t)$, a helyi oszcillátor jele pedig $B \sin(\omega_2 t + \varphi_1)$, ahol A és B a jelek amplitúdói, ω_1 és ω_2 a körfrekvenciák, φ_1 pedig a két jel közötti fáziskülönbség.

Szorzatuk $\frac{AB}{2} \cos[\varphi_1 - (\omega_1 - \omega_2)t] - \frac{AB}{2} \cos[\varphi_1 + (\omega_1 + \omega_2)t]$ alakú.

A minta tulajdonságairól információt hordozó U_2 jel esetében

legyen a referencia jel $A' \sin(\omega_1 t + \varphi_2)$, a helyi oszcillátor jele ugyancsak $B \sin(\omega_2 t + \varphi_1)$.

Szorzatuk $A'B[\sin(\varphi_1 + \varphi_2) + \cos(\varphi_1 - \varphi_2) + \sin[(\omega_1 + \omega_2)t] + \cos[(\omega_1 - \omega_2)t]]$ alakú lesz.

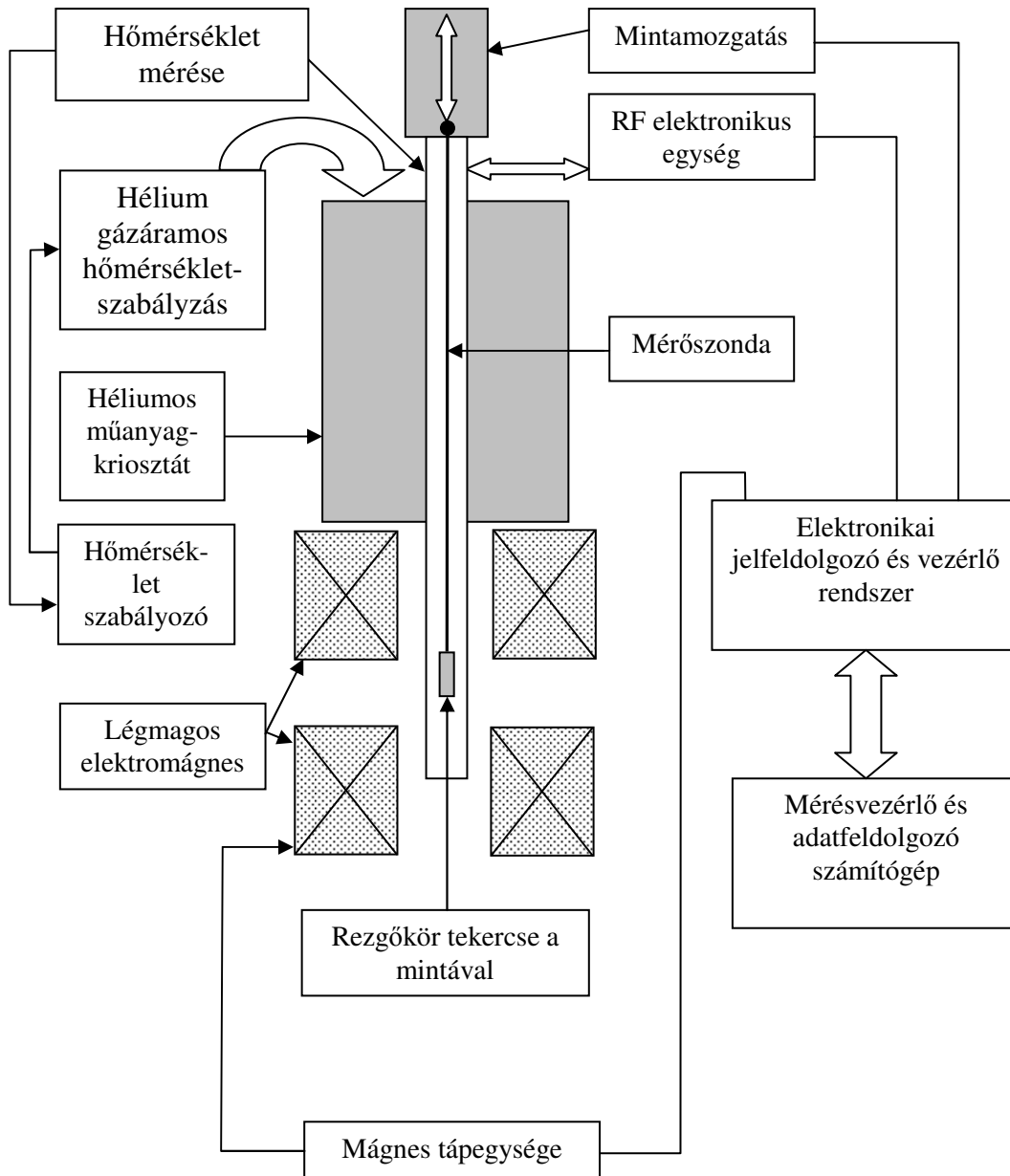
Látható, hogy mind a két jel esetében van egy nagyfrekvenciás tag, ahol a két frekvencia összege szerepel, valamint egy kisfrekvenciás összetevő, amelyben a két frekvencia különbsége szerepel. A mérőrendszerbe beépített aluláteresztő szűrő szerepe az, hogy a nagyfrekvenciás összetevőket kiszűrje és csak a kisfrekvenciás jeleket engedje át, melyeket egy audiófrekvenciás Lock-in analízátor már fel tud dolgozni. Míg a Lock-in analízátor referencia csatornájára az U_1 jelből kikevert jelet, addig a jel csatornájára az U_2 jelet vezetjük. A Lock-in analízátor 'Quadrature' kimenetével egy integrátoron keresztül negatív visszacsatolást alkalmazva a párhuzamos rezgőkörben elhelyezett varicap diódák kapacitását vezéreljük úgy, hogy a 'Quadrature' értéke zérus legyen. Ezzel elérjük, hogy a rezgőkör mindig a rezonancia frekvencián üzemel és a varicap diódák hangolására alkalmazandó vezérlő feszültség értéke csak a tekercsbe helyezett minta mágneses tulajdonságától függ.

Ha valamilyen anyagot helyezünk a rezgőkör tekercsére, akkor megváltozik a tekercs induktivitása és rezonancia frekvenciája. Célunk a minta által okozott rezonancia frekvencia eltolódás mérésével a minta komplex szuszceptibilitása valós részének a meghatározása. A képzetes része a rezgőkör veszteségéből határozható meg. A rezgőkörnek minta nélküli veszteségét egy, a tekercssel sorba kapcsolt r ellenállással szoktuk figyelembe venni. Ezen az ellenálláson disszipálódó energia ekvivalens a rezgőkör veszteségével, ami $\langle r I_L^2 \rangle$ nagyságú. Ha mintát helyezünk a tekercs belsejébe, akkor a mintában fellépő energiadisszipáció miatt megnő a rezgőkör vesztesége, ami r növekedését jelenti: $r \rightarrow r + \delta r$. A $\langle \delta r I_L^2 \rangle$ energiaveszteség növekmény pedig lerontja a rezgőkör jósági tényezőjét és a rezgőkörön mért feszültség a rezonancia frekvencián lecsökken.

3.3 Az elektronikai jelfeldolgozó egység felépítése

Az elektronikai jelfeldolgozó és vezérlő rendszer a következő feladatokat látja el:

1. Biztosítja az RF elektronikus egység RF meghajtását, szabályozását és tápellátását.
2. Fogadja az RF elektronikus egység kimenőjeleit és azokat feldolgozza, előállítja az RF rezgőkör rezonancián tartásához szükséges szabályozó feszültséget.
3. A feldolgozott kimenő jeleket kondicionálja a számítógépes feldolgozás igényének megfelelően.
4. Vezérli a léghagos elektromágnes tápegységet, fogadja a mágnes áramára vonatkozó analóg információt.
5. Működteti a minta mozgatóját biztosító elektromágneket.



10. ábra.

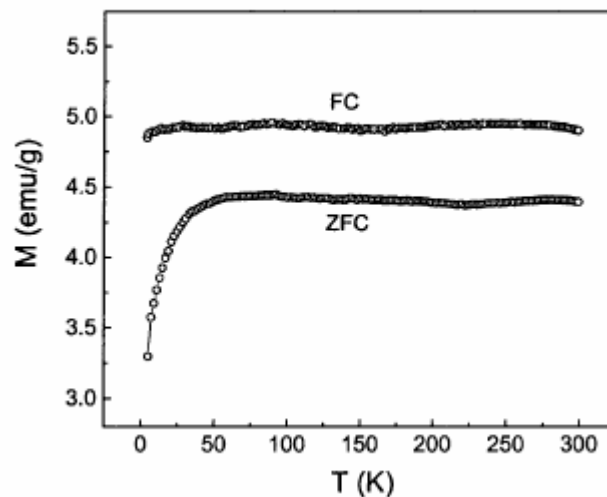
A mérőelrendezés elektronikai blokksémája.

4 Saját eredmények

4.1 *Nanokristallitos ferromágneses anyagok*

A nanokristályos anyagok mágneses tulajdonságaikban jelentősen különböznek a polikristály és egykristály szerkezetű anyagokétól. Különösen az alacsonyhőmérsékleti viselkedés az, amiben jelentős lehet a különbség. Egy adott hőmérsékleten a szemcsék közötti kölcsönhatás miatt az anyagban befagy a mágneses szerkezet, mely hosszúidejű relaxációval egyre kedvezőbb energetikai állapotot igyekszik felvenni. Az anyag kémiai összetétele és belső szerkezete az, ami meghatározza ezt a folyamatot.

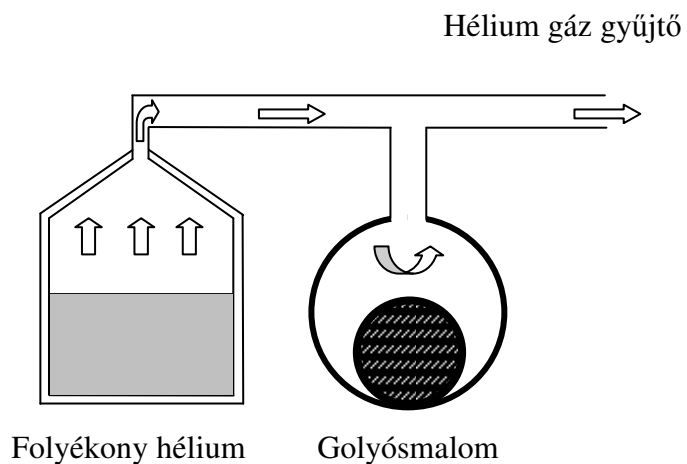
Golyósmalomban örölt nanokristályos szerkezetű vas mágneses szerkezetének vizsgálatáról E. Bonetti és szerzőtársai publikálták az eredményeiket 1999-ben [3]. Azt találták, hogy 70 K alá csökkentve a hőmérsékletet, az anyag ferromágneses állapotból átmegy klaszter-üveg állapotba. A mágneses viselkedést a ferromágneses szemcséket egymástól elválasztó, mágneses szempontból eltérő tulajdonságú szemcsehatár réteg szerepével magyarázták. A klaszter-üveg állapot kialakulására feltételezték, hogy ezen szemcsehatár rétegben is végbemegy egy paramágneses/spin-üveg fázisátalakulás a határfelületi anizotropia miatt. Nem vizsgálták a szerepét a határfelületi szennyeződésnek, továbbá egy elég különös mérési eredményt is közöltek a rendszer FC és ZFC mágnesezettség hőmérséklet függésére. Ez utóbbi eredményüket szemléltetem a 11. ábrán. E szerint a FC és ZFC állapotok között már a szobahőmérsékleten óriási különbség van, ami érthetetlen volt számunkra. Lényegében ez inspirált bennünket a saját kísérleteink elvégzésére, mivel a nyilvánvaló ellentmondásra magyarázatot szerettünk volna kapni.



11. ábra.

Fe nanokristályos anyag mágnesezettségének mérése FC és ZFC módon preparált termodinamikai állapotokban. A mágnesezettség mérése 50 Oe erősségű mágneses térben történt [3].

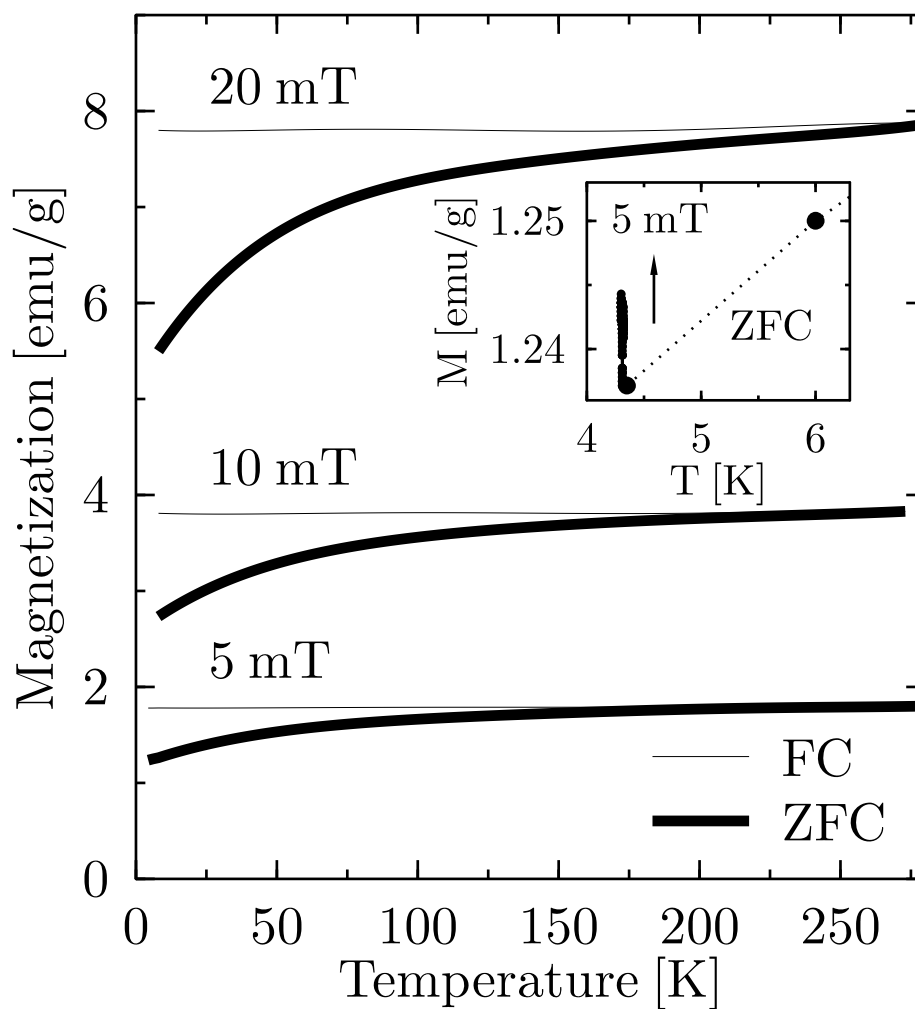
Méréseinket tiszta nanokristályos Fe anyagon hajtottuk végre. Két mintát készítettünk az ATOMKI röntgenspektroszkópai laboratóriumában megtalálható őrlő malom segítségével 99,9 % tisztaságú, 325 mesh finomságú vasporból, mint kiindulási anyagból. Míg az egyiket 10^{-6} mbar nagyságú vákuumban őrlöttük, a másikat 1 bar nyomású tiszta hélium gázban. Az összeőrölt porokból tablettákat készítettünk, hogy a szemcsék ne mozogjanak a mérés alatt. Az átlagos szemcseméret 20 nm volt a vákuumban őrlött, és 30 nm a hélium gázban őrlött mintában. Röntgenanalitikai méréssel megállapítottuk, hogy az őrlés folyamán a malomból 2 % króm szennyező került az anyagba. Mágnesezettség méréseinket 'extract'-ciós magnetométerrel a szupravezető mágneses kriosztátban végeztük. ZFC mérés előtt a mintákat gondosan lemágneseztük, így a mágneses előéletük nem zavarta a mérési eredményeket.



12.ábra.

A mintakészítő berendezésünk.

A mágnesezettségek hőmérsékletfüggését mutatja a 13. ábra. A ZFC görbék esetében a minták hűtése a legalacsonyabb hőmérsékletig nulla mágneses térben történt, majd a mágnesezettségek mérése 5, 10 és 20 mT mágneses térben, miközben a hőmérséklet folyamatosan nőtt. Elérve a maximális hőmérsékletet, a tér változatlan értéke mellett ismételt hűtésekor rögzítettük a FC mágnesezettség értékeket.

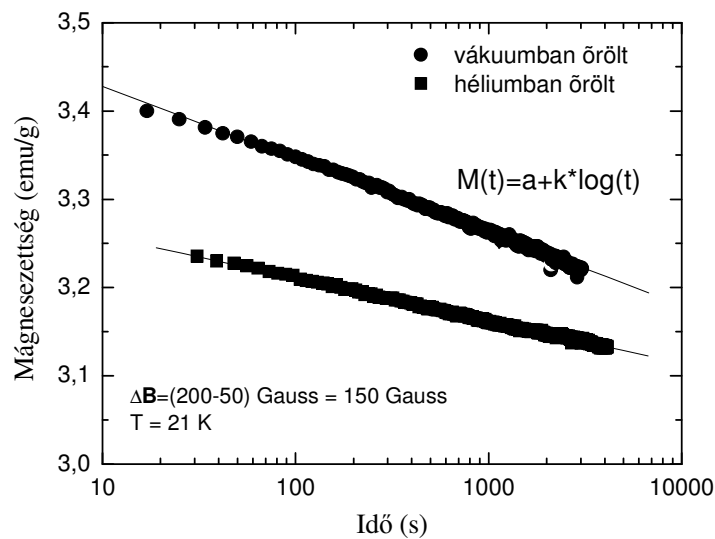


13. ábra.

Golyósmalomban őrzött nanoszerkezetű vas mágnesezettségének hőmérséklet függése FC és ZFC esetekben, különböző mágneses tereket alkalmazva. A betét ábra a mágnesezettség relaxációját mutatja 20 perc alatt.

A ZFC/FC állapotok ilyen típusú viselkedése a mágneses rendszerben meglévő frusztrációkra és spin-üveg szerkezetre utal. Nyilvánvaló, hogy a

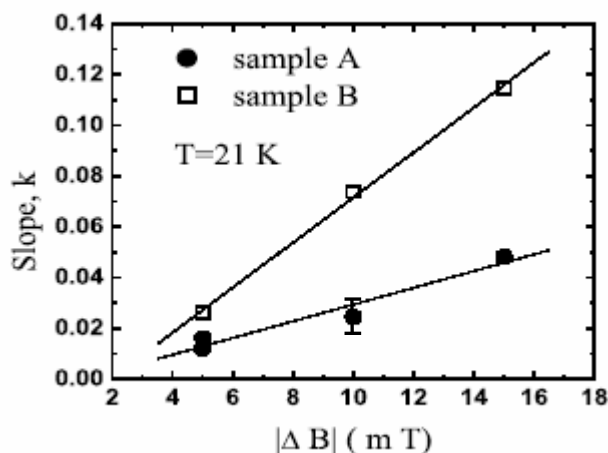
hőmérsékletet növelve, majd a maximális érték elérése után ismét csökkentve, a maximális értéknél nem lép fel ugrásszerű változás a rendszer állapotában mint azt [3]-ban állították. Ez annál is inkább így van, mivel mérésünkben a maximális hőmérséklet is eseti érték, a minta belső fizikai paramétereitől nem függhet. Az FC és ZFC görbék szétválása a spin-üveg állapot kialakulását jellemző bifurkációs pontban következik be, ami jóval 300 K felett van. A bifurkációs pont kísérleti meghatározása a rendelkezésünkre álló kísérleti feltételekkel sajnos nem volt lehetséges. Az üvegállapotra jellemző metastabil energiaállapot kísérleti kimutatását a mágnesezettség időbeli változásának mérésével lehet megvalósítani. A lehűtés után a célhőmérsékleten stabilizálva a minta hőmérsékletét, majd mérve a mágnesezettséget egy adott mágneses térben, relaxációt tapasztalunk, mivel a rendszer a végleges stabil energia állapotába nem pillanatszerűen jut el. Ezt a folyamatot látjuk a 13. ábra betét grafikonján, vagy a 14. ábrán.



14. ábra.

A különböző módon preparált minták mágnesezettségeinek relaxációja. A hűtés folyamán alkalmazott 200 G külső mágneses teret a 21 K célhőmérséklet elérése után lépcsőszerűen csökkentettük 50 G-ra.

A relaxáció logaritmikus függvény szerint írható le, ami a bevezetésben leírtaknak megfelelően azt jelenti, hogy a mágneses részecskék közötti kollektív kölcsönhatás határozza meg energiaállapotukat. A 14. ábrán feltüntetett k együttható függ nemcsak a ΔB mágneses tér változástól, de a hőmérséklettől is. Ez az állításunk is ellentmond a [3]-as közleményben leírtakkal, ahol a szerzők a relaxációs folyamat hőmérséklettől való függetlenségét bizonyítják. Eredményünk helyessége inkább valószínű, mivel kissé nehezen lenne értelmezhető olyan folyamat nanoszerkezetű mágneses anyagban, ahol a relaxáció aktivációs energiája hőmérséklet független. További mérésekkel megállapítottuk azt is, hogy a relaxáció sebessége független az alkalmazott térváltozás irányától, csak a térváltozás nagysága határozza meg.



15. ábra.

A különböző módon preparált minták relaxációs sebességét jellemző k együttható a térerősség változás függvényében.

A ZFC mágneszettség hőmérsékletfüggése is a mágneses rendszer belső tulajdonságaira ad felvilágosítást. Ezért különböző mágneses terekben rögzítettük a mágneszettség változását 4,2 K és 280 K hőmérséklettartományban úgy, hogy a mintát előzőleg nulla mágneses térben hűtöttük le. Természetesen minden egyes ZFC függvényhez meghatároztuk az FC párját is. A mérési eredményt a 16. ábrán szemléltetem. Miután 280 K hőmérsékleten összenormáltam az adatokat, a mágneses tér hatása nyilvánvalóvá vált: a mágneses tér növelésével

mágneses tér növelésével eltűnik. De eltűnik akkor is, ha hőkezelést végzünk a mintán. Abban a mintában, melyet vákuumban állítottunk elő, nagyobb volt az FC/ZFC állapotok közötti különbség, mint amelyiket tiszta hélium gázban öröltünk. Vagyis ez a jelenség a nanoszerkezet kialakulásával és az oxigén jelenlétével magyarázható. Az őrlés folyamán a szemcsék közötti határreteg oxigén dús lesz, mely szuperparamágneses kölcsönhatást közvetít a nanoszerkezet szemcséi között egy bizonyos blokkolási hőmérséklet felett. Hasonló jelenséget tapasztaltak oxigénben kezelt vas nanoszerkezetekben mások is [29].

4.2 *EuSrCoO és LaSrCoO perovszkit anyagok*

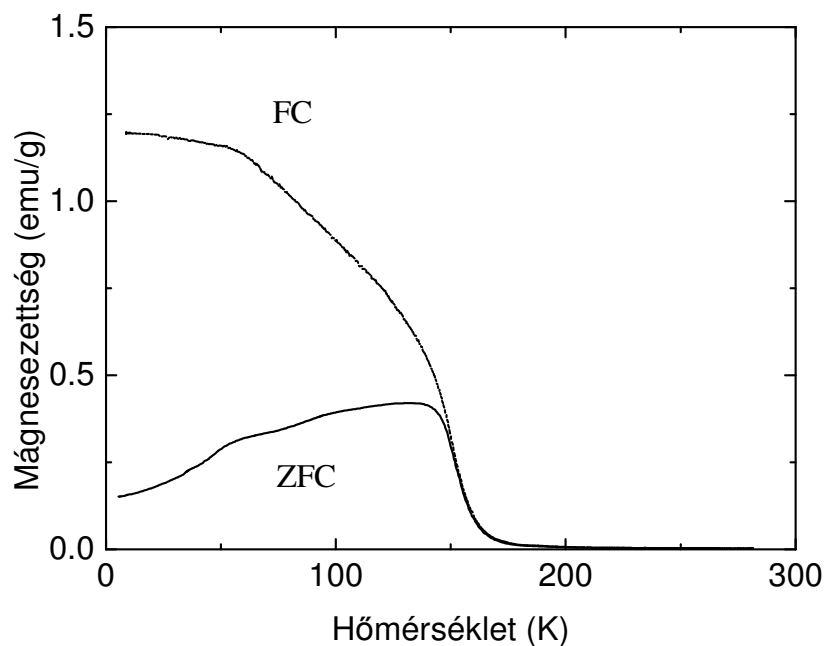
A méréseinkhez használt $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_{3,8}$ ($x=0.025, 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.3$) mintákat Barman és munkatársai szokványos kerámia előállítási eljárással készítették. A sztöchiometriai aránynak megfelelő La_2O_3 , SrCO_3 , Fe_2O_3 és Co_3O_4 anyagokat jól összekeverték desztillált etanollal és a keveréket hosszú időn keresztül homogenizálták. Ezután szárították, majd 24 órán keresztül levegőn 1073 K-en kalcinálták. A kalcinált port örölték, majd három tonna nyomással tablettá formába préselték és levegőn 1273 K hőmérsékleten szinterelték. Ezt a folyamatot a jobb kristályosodás érdekében legalább háromszor megismételték. A mintákat végül 1473 K-en szinterelték. A gyártás után a mintákon végrehajtott röntgendiffrakciós (XRD) vizsgálatok egyfázisú perovszkit struktúrát mutattak.

Az AC szuszceptibilitás mérésekhez 15÷25 mg tömegű mintákat használtunk $H_{ac} \sim 300$ A/m térerő mellett 133 Hz, 1 kHz és 10 kHz frekvenciákon, 5-250 K intervallumban a hőmérsékletet mindig 1 K/perc sebességgel folyamatosan változtatva. A 2.5, 10 és 30% Fe doppelású mintákon rezgőmérés magnetométerrel 50 G térerő mellett alacsonyterű DC ZFC (zero-field-cooled) és FC (field-cooled) mágnesezettség mérést is végeztünk.

A 2,5% Fe tartalmú mintára felvett DC szuszceptibilitás görbét mutatja az 17. ábra, miközben nulla térben való hűtés után 50 G térben felmelegítjük 5 K-ről 270 K-re (ZFC), majd ugyanabban a térben visszahűtjük 5 K-re. A hőmérséklet csökkenésével, ~150-160 K környékén a ZFC szuszceptibilitás meredeken emelkedik, majd kevésbé meredeken csökken 53 K-ig. Megjegyzendő, hogy 50 K alatt a csökkenés meredeksége nő. A ZFC és FC szuszceptibilitások értékei 153 K környékén és fölötté egyenlőek. 150 K alatt a hőmérséklet csökkenésével az FC szuszceptibilitás továbbra is meredeken nő egészen 58 K-ig, de a növekedés

sebessége enyhe csökkenést mutat 140 K környékén. 53 K-en a növekedés átcsap egy relatíve lassúbb változásba.

Az $M(T)$ -ben tapasztalt trendek hasonlóak az M. Itoh és munkatársai [30] által publikált eredményekhez. A mágnesezettségben tapasztalt meredek növekedést a véges hatótávolságú ferromágneses rend (csatolódás?) megjelenéséhez kötjük, mely a kvázikritikus T_c hőmérséklet körül klaszterek formálódásához vezet. $T_c \sim 150$ K alatt nagy M_{FC} és M_{ZFC} különbségből a valódi hosszútávú rend hiánya a szembeötlő. Az 50 K környéki dM/dT változás a klaszterek sztatikus térben befagyására utalhat. Klasszikus spinüvegekben az irreverzibilitás a T_f befagyási hőmérsékleten egy csaknem hőmérséklet független M_{FC} -vel kezdődik, miközben az M_{ZFC} alacsonyabb hőmérsékleteken csökken. Az M_{FC} és M_{ZFC} különbsége klaszterüvegben a spinüveg fázishoz (ami megfelel $x \leq 0,2$ -nek a $La_{1-x}Sr_xCoO_3$ -ban) képest elég alacsony hőmérsékleten sokkal nagyobb. Ez a nagy remanencia a klasztereken belüli rövid hatótávolságú ferromágneses rendeződésre utal.

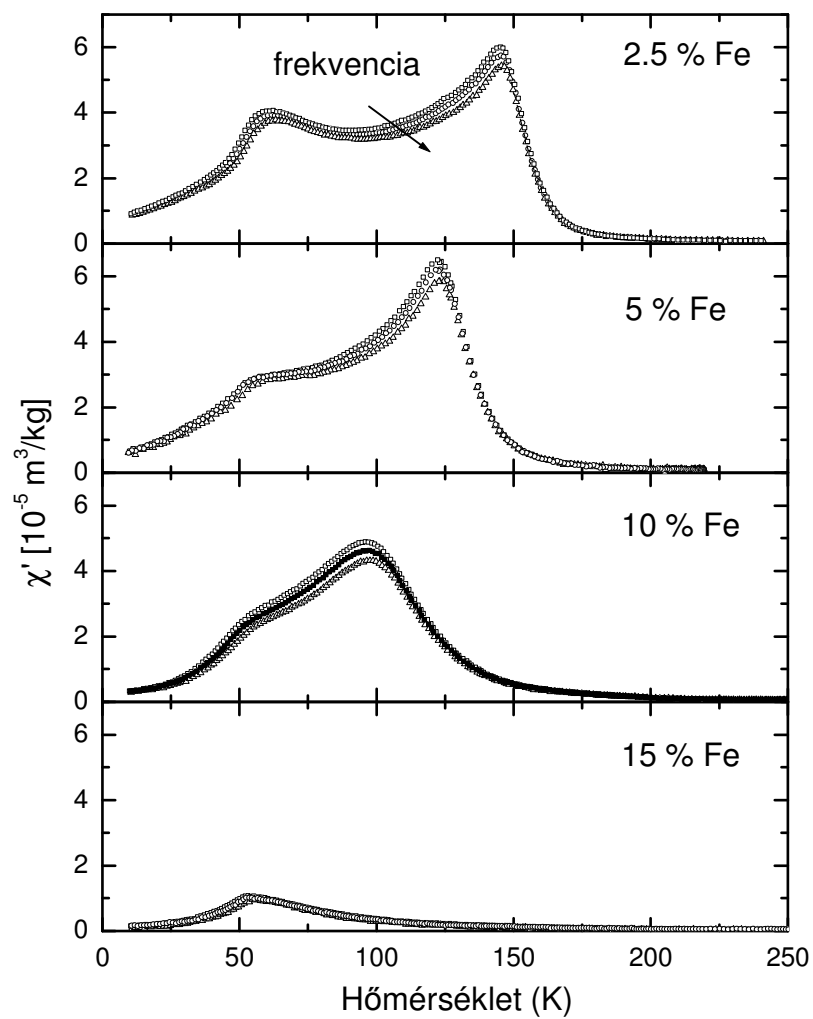


17. ábra.

A $La_{0,8}Sr_{0,2}Fe_{0,025}Co_{0,975}O_{3-\delta}$ minta tér nélkül hűtött (ZFC) és a térben hűtött (FC) DC mágnesezes szuszceptibilitásának hőmérsékletfüggése. $B_{DC} = 50$ Gauss

Az AC szuszceptibilitás mérésekkel részletesebb betekintést nyerünk a spin befagyás dinamikájába. A mérés értékelése előtt megjegyezzük, hogy egy rövid távú kölcsönhatásokból kialakult klaszterek rendszerében, a befagyás a lokális anizotrópia által indukált energiagát legyőzésének valószínűségétől függ. A hőmérséklet csökkenésével T_f -nél egy anomália jelenik meg az AC szuszceptibilitásban, amikor τ nagyobb lesz, mint a karakterisztikus mérési idő. Másrészt a széles klaszterméreteloszlás miatt a relaxációs időspektrum is széles, ezért az AC szuszceptibilitás maximuma egyfajta átlaga az eloszlás legnagyobb relaxációs időinek.

Ezt előrebozsátva az 18. ábrán tüntettük fel a szuszceptibilitás hőmérsékletfüggését a különböző mértékben Fe doppolt mintákra.



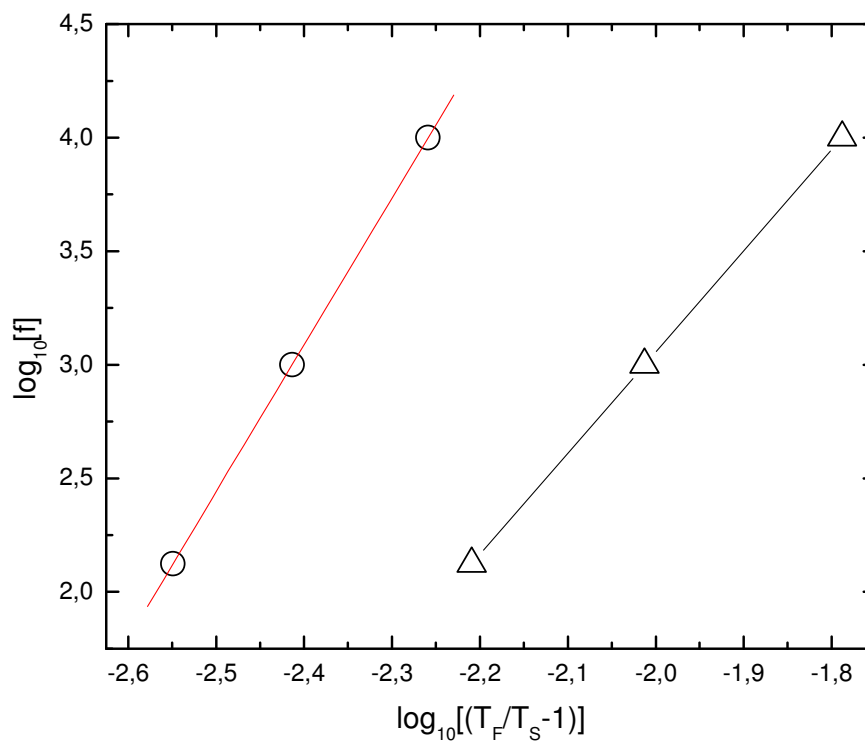
18. ábra.

A szuszceptibilitás valós részének változása a vasdoppolás és a hőmérséklet függvényében a $La_{0,8}Sr_{0,2}Fe_xCo_{1-x}O_3$ mintákra, $x=0.025, 0.05, 0.1, 0.15$. $H_{AC} = 370$ A/m.

A 2,5%-os vasdoppolású mintában a χ' meredeken növekszik a rövid távú ferromágneses rend kialakulásra utalva T_c -nél. Ezután a szuszceptibilitás csökken, majd $T_f = 50$ K környékén egy újabb csúcsot mutat. Mindkét csúcs amplitúdója jelentős frekvenciafüggést mutat. Az alsó csúcs hőmérséklete jelentősen függ a frekvenciától. Megjegyzendő, hogy a szokásos paramágneses/ferromágneses átalakulásokkal szemben a T_c környéki csúcs is enyhén frekvenciafüggő.

Növelve a vasdoppolás mértékét a T_c úgy csökken, hogy közben a $\left| \frac{d\chi}{dT} \right|$ is csökken és az átmeneti tartomány szélessége nő. Az alsó csúcs hőmérséklete gyakorlatilag változatlan marad. A szuszceptibilitás a felső csúcs felett is fokozatosan frekvenciafüggővé válik. 15%-os vasdoppolásnál a felső csúcs eltűnik és összeolvad az alsó csúccsal, az AC szuszceptibilitás amplitúdója jelentősen csökken és a szuszceptibilitás görbe a spinüvegekre jellemző 'cusp' jelleget kezd felvenni.

A csúcshőmérséklet frekvenciafüggő eltolódása jellemezhető a konvencionális kritikus lassulással a $\tau/\tau_0 = (T_f/T_c - 1)^{-z\nu}$ összefüggés szerint. Az összefüggéssel való jó egyezést mutatja a következő ábra a 2,5% (kör) és 5%-os (háromszög) vastartalmú minták felső csúcsaira.



19. ábra.

A csúcshőmérséklet frekvenciafüggő eltolódása.

Fe tartalom	Alsó csúcs			Felső csúcs		
	T_s (K)	τ_0 (s)	$z\nu$	T_s (K)	τ_0 (s)	$z\nu$
2.5%	59,6	$9,3 \cdot 10^{-11}$	5,2	145,2	$1,51 \cdot 10^{-19}$	6,6
5%	Nem értékelhető			121,5	$1,10 \cdot 10^{-12}$	4,4
10%	Nem értékelhető			95,2	$3,3 \cdot 10^{-11}$	4,1
15%	51	$3,8 \cdot 10^{-12}$	7,1	Nem értékelhető		

5. táblázat.

Az összes csúcsra kapott illesztési paraméterek.

A kapott üvegesedési értékek teljesen realiztikusnak tűnnek a T_F nulla frekvenciára való extrapolációjával. A felső csúcs exponense trendszerűen csökken a doppelással. Meg kell azonban jegyezni, hogy a kapott $z\nu$ értékek elég alacsonynak. $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ spinüvegre Wu [15] tipikusan 9-10 között értékeket ad meg, míg spin-klaszterüvegre [31] szerint $z\nu \sim 9,5-11,5$ közötti érték. A 2,5% Fe doppelásos mintához tartozó T_F -nél a $\tau \sim 10^{-10}$ s nagyságrend egyértelműen jelzi a nagy klasztermérethez tartozó lassú dinamikát, ugyanakkor a 2,5%-os minta T_c -jénél kapott idő irreálisnak tűnik annak fényében, hogy az atomi spin-átfordulás ideje 10^{-13} s nagyságrendű.

A $\chi''(T)$ függvény a $\chi'(T)$ -hez hasonlóan két maximumot mutat, egy enyhén frekvenciafüggőt közvetlenül T_c alatt és egy erősebben frekvenciafüggőt $T_f \sim 50\text{K} < T_c$ környékén. A T_f környéki frekvenciafüggő maximum a ferromágneses állapoton belüli dinamikus spinbefagyást indikálja. A csúcsok frekvenciafüggését számszerűsítve a $g = \Delta T_f / [T_f \Delta(\log_{10}[f])]$ értékkel az alábbi táblázatban feltüntetett adatokat kaptuk.

Fe [%]	g	
	$T_f \sim 50$ K-es csúcs	Felső csúcs - T_c
2,5	0,042	0,0056
5	0,024	0,01
10	0,04	0,025
15	0,006	

6. táblázat.

A g paraméterfüggése a vas koncentrációjától.

Az adatok értékeléséhez megjegyezzük, hogy spinüvegekben tipikusan $g \sim 0,005-0,01$ értékeket találtak [32]. A ritkaföldfém helyen doppel manganitok $g < 0,05$ -öt mutatnak [33], [34], [35] $g \sim 0,03-0,06$ -ot találtak a $\text{La}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{CoO}_3$ klaszterüvegben [36].

Ezek alapján a felső csúcs paraméterei a spinüvegekre jellemző tartományban vannak, és a vasdoppelás hatására fokozatosan növekszenek. Az alsó csúcs paraméterei inkább a klaszterüvegre jellemző értékeket mutatják. 15%-os vasdoppelásnál a felső csúcs megszűnik, és az alsó csúcs g paramétere

ugrásszerűen a spinüvegre jellemző értékre esik vissza. Ez a nagy váltás, a $\text{La}_{1-y}\text{Sr}_y\text{CoO}_3$ beli $y_{\text{krit}} \approx 0.18$ kritikus Sr doppelási szinthez hasonlóan, valószínűsíthetően egy FM/SG fázishatárt jelöl az $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_{x_{\text{krit}}}\text{Co}_{1-x_{\text{krit}}}\text{O}_3$ -ban, ahol $0,1 < x_{\text{krit}} < 0.15$.

Az anyag mágneses dinamikájának további jellemzésére a relaxációs folyamatot először az Arrhenius-típusú függvénnyel illesztettük. Az így kapott eredmények fizikailag értelmetlenek voltak (pl. $\tau \sim 10^{-195}$ s), tehát a rendszer tapasztalt viselkedése nem írható le nem kölcsönható mágneses entitások együtteseként. Az interakciók hatásának jellemzésére ezért a Vogel-Fulcher (VF) közelítést használtuk. Az egyes paraméterek illesztett értékeit az alábbi táblázat felső része tartalmazza. A táblázat alsó részén a T_c -hez újraiteráltuk az eredményeket és a VF illesztéshez bemenő paraméterként a dinamikus skálázásból kapott τ -t használtuk.

Fe tartalom	Alsó csúcs			Felső csúcs		
	T_0 (K)	τ (s)	U/k_B (K)	T_0 (K)	τ (s)	U/k_B (K)
2,5%	40	$5 \cdot 10^{-12}$	230	132	$2 \cdot 10^{-12}$	150-180
5%	42,5	$1,2 \cdot 10^{-12}$	150	108	$1,4 \cdot 10^{-12}$	150-170
10%	38	$2 \cdot 10^{-12}$	203	74	$1 \cdot 10^{-11}$	219
15%	49	$5 \cdot 10^{-12}$	19	Nincs csúcs		
2,5%				123	$1,5 \cdot 10^{-19}$	623
5%				110,2	$1,1 \cdot 10^{-12}$	152
10%				75,2	$3 \cdot 10^{-11}$	181
15%				Nincs csúcs		

7. táblázat.

A Vogel-Fulcher közelítéssel kapott eredmények.

Végezetül foglaljuk össze, hogy milyen mikroszkopikus fizikai képpel értelmezhetjük a kapott eredmények. A vasmentes minta összetétele szerinti SG/FM fázishatáron volt, benne léteztek a még nem perkolálódott mágneses klasztereknek valamilyen adott átlagos mérettel és méreteloszlással. Homogén

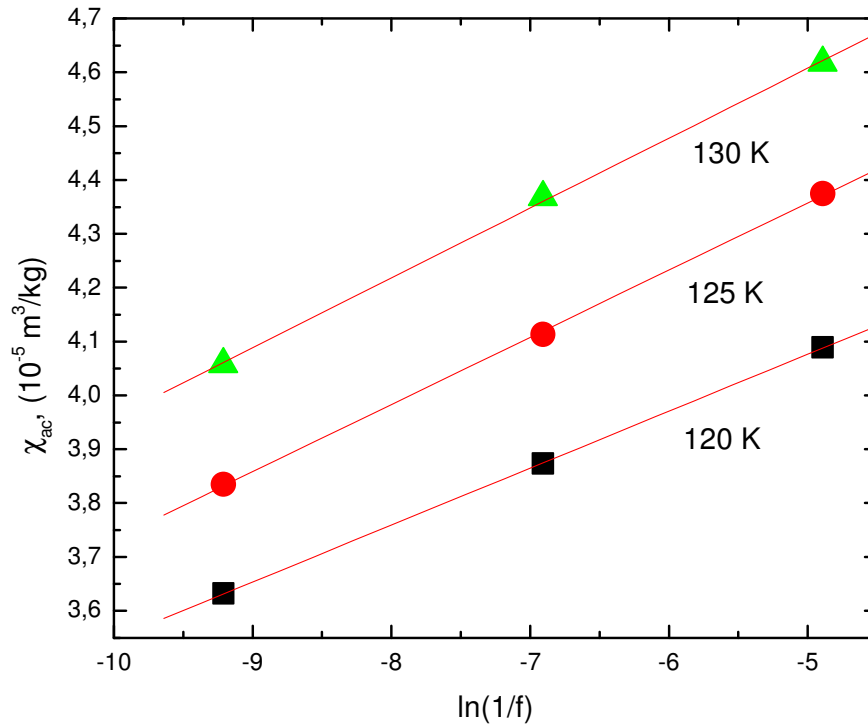
minta ferromágnesessége arányos a klaszterek méretével. A hőmérséklet csökkenésével a klasztereken belül lejátszódik a PM/FM átmenet és ezek után valamilyen alacsonyabb hőmérsékleten a klaszterek befagynak. Ezt a klaszterüveg jelleget mutatja az alsó csúcs. Az mintaösszetétel szerinti SG/FM fázishatár miatt a klaszterek jelentősen érzik az AF mátrix hatását, ezért a klaszterképződési csúcs is frekvenciafüggő.

Ha a klasztereket darabolom, a mágnesezhető térfogat egy része elveszik, a klaszterek felületi aránya megnő és nagyobb lesz a frusztráció a felületi AF kölcsönhatások miatt. Ez az effektus a g növekedésének irányába hat. Másrésztől a klaszterek darabolásával nem csak az átlagos klaszterméret csökken, hanem a méreteloszlás is szélesedik. Emiatt szélesednek a mágnesezettségi görbék (az FM jelleg megszűnését jelezve) és szélesedik az AC görbék felfutása. Ez a folyamat is a felső csúcs g paraméterének növekedése irányába hat.

A ferromágneses jelleg megszűnése után a CG (spin-klaszterüveg) befagyási csúcs g paraméterének értékében ugrásszerű csökkenés figyelhető meg egy SG fázisra jellemző értékre.

Mivel a fenti folyamatokat figyeltük meg, ezek szerint a Fe doppelás rontja a mágnesez korrelációs hosszát. A kobaltitban az azonos spin állapot ellenére Co^{4+} nem helyettesíthető Fe^{3+} -al. Ellenben figyelemre méltó, hogy a SG jelleg teljes megjelenése előtt nagyon sok vasat elbír a minta, amely már vas nélkül is eredendően az összetétel szerinti SG/FM fázishatáron volt.

További kérdés, hogyan viszonyulnak egymáshoz egy adott T hőmérsékleten a különböző időablakokban (frekvenciákon) mért szuszceptibilitások. A vizsgált 5-260 K hőmérséklet intervallumban az $\chi'(\omega, T)$ szuszceptibilitás adatok túlnyomó része egy adott hőmérsékleten lineárisan skálázható $\ln(1/f)$ -el (lásd 20. ábra) a többi rész pedig az ún. stretched exponenciális formával írható le.



20. ábra.

1/f-es skálázás 120 K környékén, 2,5 % Fe doppelás esetén.

A jelenség magyarázatához megjegyezzük, hogy nem kölcsönható rendszerre vonatkozó DC mágneses relaxációs mérésekből ismert, hogy amennyiben a relaxációt csak termikus effektusok okozzák, akkor a relaxációs adatok $M(t) \sim T \cdot \ln(t/\tau_0)$ szerint skálázhatók. Ez az analízis azon a tényen alapul, hogy T hőmérsékleten a t idő alatti mágnesezettség változás az $U_t = k_B T \cdot \ln(t/\tau_0)$ nagyságrendű gát legyőzése útján jön létre [37]. Nagyon rövid és nagyon hosszú várakozási idők esetén azonban spinüvegre is a klasszikus DC relaxációs kísérletekkel $M(t) \sim \log(t)$ időfüggéssel jellemezhető kvázi-egyensúlyi dinamikát figyeltek meg, míg a nem-egyensúlyi dinamikára inkább az időfüggő 'ageing', a stretched exponenciális forma a jellemző [32].

A fentiek figyelembe vételével az AC szuszceptibilitás méréseink a vizsgált hőmérsékleti tartomány nagy részén kvázi-egyensúlyi dinamikát

tükröznek, a nemegyensúlyi dinamikával jellemezhető szakaszok pedig egyfajta rezsimváltás nyomai a spinrendszer dinamikájában. Ilyen rezsimváltások a FM/PM fázisátmenet (a klaszterek kialakulása), majd pedig alacsonyabb hőmérsékleten a klaszterek befagyása. Az, hogy valóban történik-e fázisátmenet, azt a nemlineáris szuszceptibilitás divergenciájának és exponensének mérése útján lehet eldönteni, melyhez a szükséges műszerfejlesztést elkezdtük.

4.3 A mágneses örvényrendszer relaxációja $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ -ban

A magas kritikus átmeneti hőmérséklettel rendelkező szupravezetőknel (MHS anyagok) a relaxációs jelenségek vizsgálata hangsúlyozottan előtérbe került. Ennek oka a klasszikus szupravezetőkötől eltérő réteges szerkezetük, melyek mind a fluktuációs jelenségek, mind a relaxáció szerepét a szupravezető tulajdonságok meghatározásában erőteljesebbé tették. Széles átmeneti hőmérséklet, mágneses és elektromos anizotrópia, kis kritikus mágneses tér és kritikus áram, nagy behatolási mélység a mágneses tér esetében és rövid koherencia hossz jellemzi ezeket a rendszereket. A bevezetőben ismertetett TAFF és fluxus csúszás jelenségek igazán kutatott témakörökké csak az MHS anyagok felfedezése után váltak. A hosszú idejű relaxációs jelenségek a klasszikus szupravezetőknel is ismertek voltak, pl. a Kim-Anderson-féle kísérletet, mellyel a fluxus csúszás mértékét kísérletileg sikerült meghatározni. A relaxáció kimutatható mágneszettség és kritikus áram mérésrel egyaránt. A jelenségek, bár a megnyilvánulási forma más, közös fizikai háttérrel rendelkeznek. Nevezetesen, az a tényező, ami az örvényrendszer önszerveződését irányítja és választ meghatározza, mindkét esetben azonos: ez az örvényrendszer rögzítését előidéző energia gát. A kritikus áram hosszúidejű relaxációjára $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ perovszkit szupravezető esetében példaként említenék egy nagyon kifinomult módon végrehajtott mérést, melyet a szerzők 1999 és 2002-es közleményeikben ismertettek [38]. A kísérletekkel egy olyan kísérletési mechanizmust sikerült kimutatni az új típusú szupravezetőkben, mely a klasszikus szupravezetők esetében eddig nem volt megfigyelhető.

Az MHS anyagokban lejátszódó fluxusmozgási mechanizmus megértése fontos mind alapkutatási, mind alkalmazási szempontból. Szupravezető anyagokban a mágneses fluxus mozgása a feszültség megjelenésével jár, ami egyúttal energia disszipációt is jelent. Ezért lényeges gyakorlati szempontból, hogy a feszültségmentes állapot minél nagyobb áramértékig megmaradjon, minél nagyobb legyen a szupravezető kritikus árama. A relaxációs jelenségek, tágabb értelemben a fluxusmozgás tanulmányozására komplex AC szuszceptibilitás méréseket végeztem. Kritikus áram relaxációjával nem foglalkoztam. Méréseimet ugyanazokon a mintákon hajtottam végre, amelyeken a kritikus áram méréseket végezték a már említett [38] közleményekben. Ennek két előnye volt. Egyrészt, így biztosítva volt számomra a minta minősítése, hiszen kémiai, szerkezeti minősítések már rendelkezésemre álltak. Másrészt a kapott eredmények elektromos transzport mérésekkel történő összehasonlítására is mód kínálkozott.

A fluxus-folyás (flux-flow) modell szerint a fluxusmozgás dinamikáját a mágneses indukcióra felírható diffúziós egyenlet írja le. A $\partial \mathbf{B} / \partial t = -\text{rot} \mathbf{E}$, $\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$, $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ jól ismert elektrodinamikai egyenletek és a $\rho_f = 1/\sigma$ egyenlet felhasználásával a diffúziós egyenlet a $\partial \mathbf{B} / \partial t = D_f \Delta \mathbf{B}$ formában írható fel, ahol $D_f(H_{DC}, T) = \rho_f(H_{DC}, T) / \mu_0$ a fluxus-folyás diffúziós együtthatója, ρ_f a fluxus-folyás ellenállása, H_{DC} az alkalmazott külső mágneses tér. A TAFF -al jellemezhető hőmérsékleti tartományban az örvényszálak mozgása U nagyságú aktivációs potenciállal rendelkező termikusan aktivált diffúziós folyamatnak tekinthető. Kis mozgatóerő esetén (kis transzportáram esetén) az örvényszálak mozgása 'flow' típusú és az alábbi diffúziós állandóval írható le:

$$D_{\text{TAFF}} = \rho_{\text{TAFF}}(H_{DC}, T) / \mu_0 = (\rho_f U) / (\mu_0 k_B T) \cdot \exp(-U / k_B T).$$

A diffúziós egyenlet és diffúziós együttható fogalmakat általában az atomi mozgások leírására használja a szilárdtestfizika. Az atomi mozgás és az örvénymozgás között nagyon sok hasonlóság van. Sőt, a valós anyag szerkezete és fizikája, valamint az örvényrendszer mint 'vortex anyag' szerkezete és fizikája között olyan nagy a hasonlóság, hogy a szakirodalomban ezt a témát ma már vortex anyag fizikaként említik. Ezért használhatjuk a mágneses örvényrendszer esetében a diffúziós együttható fogalmát.

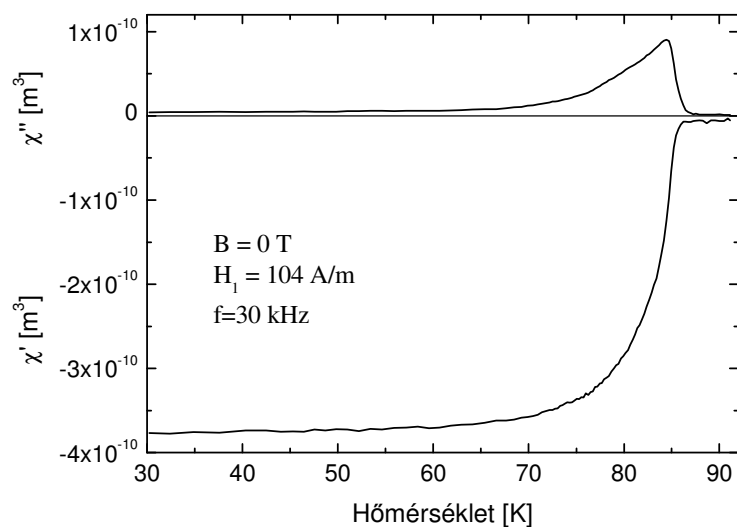
J.R. Clem [39] megoldotta ezt a diffúziós egyenletet váltakozó áramú mágneses térbe helyezett szupravezető mintára, és meghatározta a váltakozó áramú tér behatolási mélységét a TAFF tartományban:

$$X_{\text{TAFF}} = 1/R_{\text{minta}} \cdot (D_{\text{TAFF}}(H_{DC}, T) / 2\pi f)^{1/2}.$$

R_{minta} a minta geometriai paraméterét jellemzi, f a váltakozó áramú tér frekvenciája. A számolást kis amplitúdójú AC terekre végezte el a szerző. Az eredményből látszik, hogy a tér behatolási mélysége és így a komplex szuszceptibilitás χ' és χ'' értékei is függetlenek az amplitúdótól. Nagy amplitúdó esetén más a helyzet. A mágneses tér behatol az anyagba és a szupravezető örvényrendszer leírására a Bean-modellt kell használni.

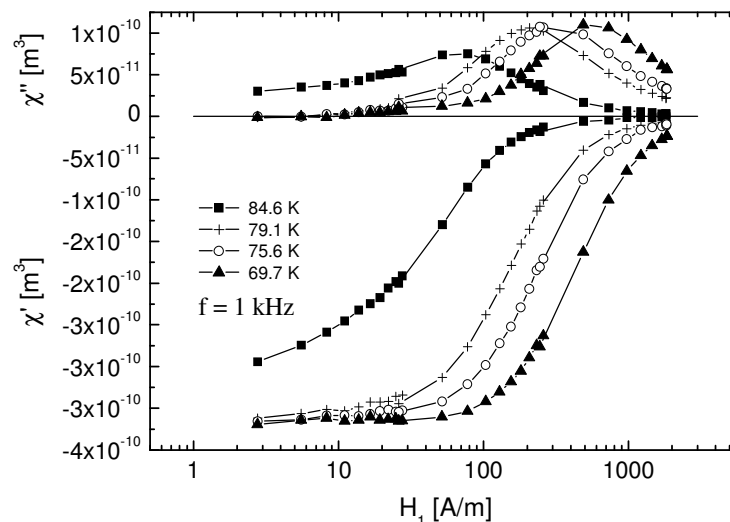
Kísérleteink eredménye teljesen alátámasztja az elméleti számolásokat. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ szupravezető egykristály AC szuszceptibilitását mértem a hőmérséklet, a gerjesztő AC és DC mágneses tér függvényében ($\mathbf{B} \parallel \hat{c}$ mind az AC, mind a DC tér esetében). Az AC szuszceptibilitás a külső gerjesztő térnek a mintában lévő örvényrendszerre kifejtett hatását méri a keltett köráramon

keresztül, ami pedig függ az alkalmazott tér amplitúdójától és frekvenciájától. A 21. ábrán bemutatom a komplex szuszeptibilitás hőmérsékletfüggését rögzített amplitúdó mellett, a 22. ábrán pedig néhány rögzített hőmérsékleten az amplitúdó függését. Kis amplitúdóknál a χ' és χ'' értékek csaknem függetlenek az amplitúdótól, míg nagy terek esetén erőteljes függést mértem. A χ'' csúcsértéke (T_P -vel jelöljük) külön figyelmet érdemel. Ez az a hőmérséklet, ahol a legnagyobb disszipációt okozza az anyagban az örvénymozgás.



21. ábra.

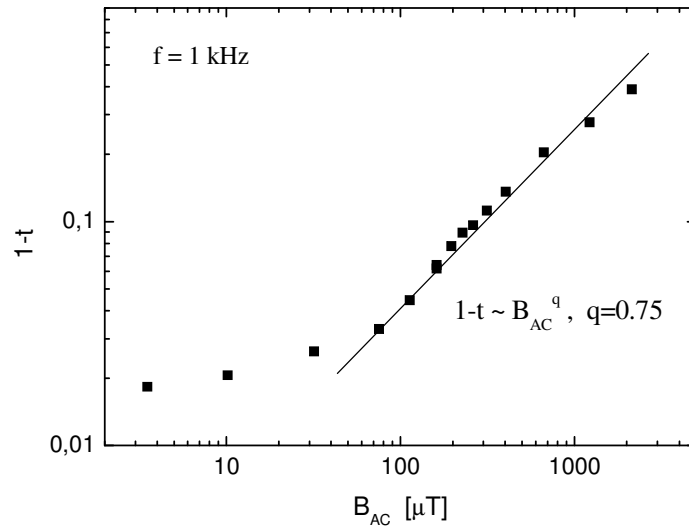
Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ szupravezető egykristály komplex szuszeptibilitásának hőmérséklet függése.



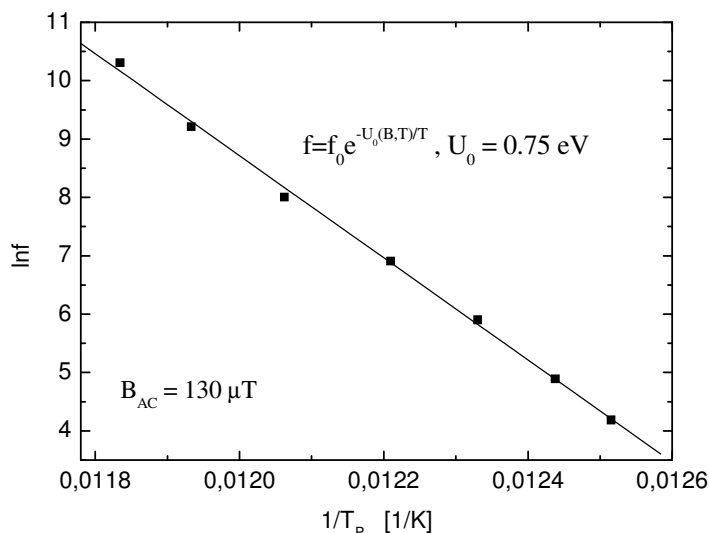
22. ábra.

Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ szupravezető egykristály komplex szuszceptibilitásának amplitúdó függése

Ábrázoltam a veszteségi csúchoz tartozó hőmérsékleteket a gerjesztő tér függvényében (23. ábra). A fluxusmozgást jellemző két típusú mechanizmus jól elkülönül egymástól. Mindkét tartományban T_p az amplitúdótól hatványfüggvény szerint függ. A nagyobb amplitúdójú tartományban a hatványkitevő értékére $q=0,75$ -öt kaptam. Az AC szuszceptibilitás frekvenciafüggéséből a termikus aktivációhoz tartozó aktivációs potenciált is meg tudtam határozni. Nulla külső DC mágneses tér esetén a potenciálgát mélységére $0,75$ eV értéket kaptam, mely az irodalmi értékekkel jó egyezést mutat [40].

**23. ábra.**

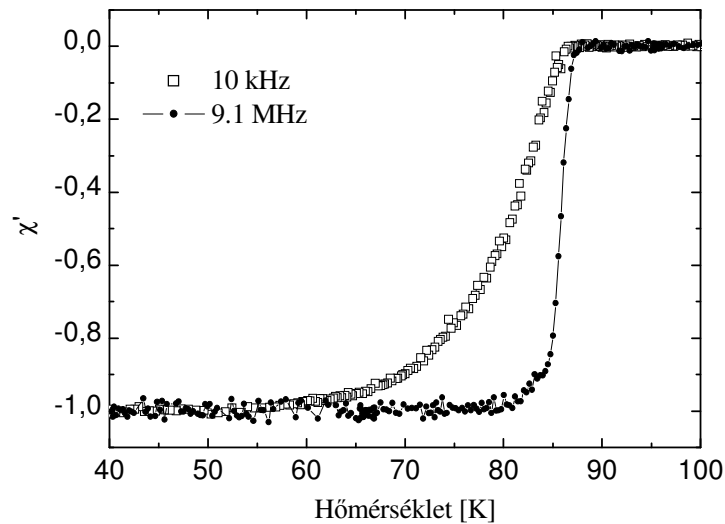
A T_p hőmérséklet amplitúdófüggése. $t=T_p/T_C$, ahol T_p a legnagyobb veszteséghez tartozó hőmérséklet és T_C a szupravezető GL kritikus hőmérséklete.



24. ábra.

A T_p hőmérséklet frekvenciafüggése.

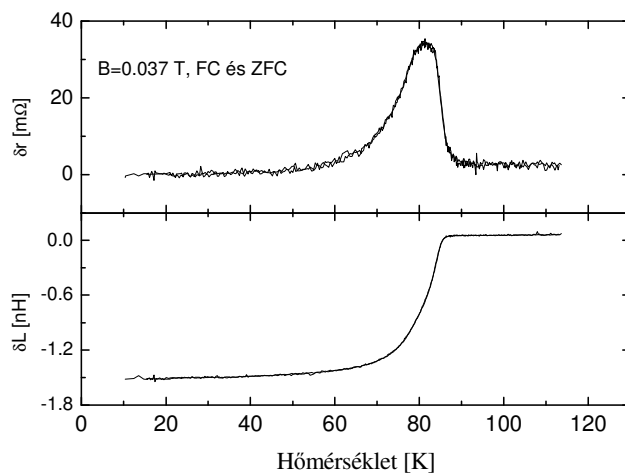
A nagyfrekvenciás szuszeptibilitás mérésével a célom az örvénymozgás dinamikájában meglévő relaxáció tanulmányozása volt. Ugyanazon a mintán elvégzett audiofrekvenciás és nagyfrekvenciás szuszeptibilitás értékek között jelentős különbség tapasztalható, amint ezt a 25. ábrán be is mutatom. Ez egyrészt amiatt van, hogy a nagyfrekvenciás esetben jóval kisebb intenzitású AC teret tudtam csak alkalmazni technikai okok miatt, másrészt már ebben a mérésben is tükröződik az örvényrendszer relaxációja. A nagyfrekvenciás rendszer elég gyors ahhoz, hogy az örvények mozgásához szükséges idő is számíton. Ezért nagyfrekvenciás esetben a megfigyelt hőmérséklet néhány fokkal magasabbnak adódott, az átmeneti hőmérsékleti tartomány pedig jóval kisebb lett. Az FC és ZFC állapotok között nincs különbség, mert az egy statikus állapot, a dinamikai állandója mindkét állapotnak ugyanaz (26. ábra).



25. ábra.

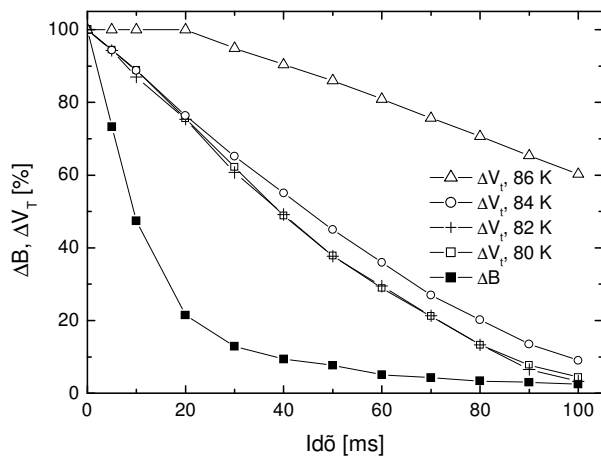
Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ szupravezető egykristály kis és nagyfrekvenciás szuszeptibilitásainak valós része.

Az örvényrendszer dinamikai viselkedésének tanulmányozására dolgoztam ki a gyors lemágnesezéses technikát. A külső mágneses tér iránya az egykristály \hat{c} kristálytani tengelyével párhuzamos volt, nagysága 40 mT. Ezt a teret a berendezés biztosította gyorsasággal csökkentettem zérusra, miközben rögzítettem a szuszeptibilitás valós részét jellemző V_T hangoló feszültséget. A 27. ábrán látható, hogy a jelenség létezik és erőteljesen hőmérsékletfüggő folyamat. A külső tér megszüntetése után nem ad a rendszer azonnali választ, körülbelül 100 ms idő kell ahhoz, hogy az örvényrendszer elhagyja a mintát. Az is látszik, hogy alacsonyabb hőmérsékleten a tér csökkenésének sebessége nem elegendő, időállandója alig kisebb az örvényrendszer időállandójánál. Jelentősen csökkenteni kell, ha precízebb mérést akarunk elvégezni. Technikailag van rá lehetőség a mágnes tápláló áramgenerátor áramának gyorsabb ütemű csökkentésével, amit mindenképpen el szeretnénk végezni, mivel ilyen típusú vizsgálatot eddig csak magneto-optikai módszerrel lehetett elvégezni [41].



26. ábra.

Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ szupravezető egykristály nagyfrekvenciás szuszeptibilitása által a rezgőkörben okozott induktivitás és veszteségi ellenállás változás FC és ZFC állapotokban. Látható, hogy a két görbe gyakorlatilag megkülönböztethetetlen.



27. ábra

A külső mágneses tér és a szuszeptibilitás valós részét jellemző V_T hangoló feszültség relatív változása.

5 Összefoglalás

Dolgozatomban áttekintettem a nanoskálájú szerkezettel jellemezhető mágneses rendszerek relaxációjának vizsgálata során nyert eredményeket, valamint ismertettem a mérésekhez szükséges fejlesztési munkám eredményeit. Az irodalmi áttekintésben összefoglaltam az általam vizsgált három különböző anyagcsalád relaxációs, és a dolgozat szempontjából általam relevánsnak tekintett információkat.

A mérés technikával foglalkozó részben ismertettem az általam használt kísérleti valamint az általam végrehajtott mérés technikai fejlesztéseket. A relaxációs jelenségek vizsgálatához konkrétan a következő mérőberendezéseket használtam:

- rezgőmintás magnetométer
- audiofrekvenciás szuszceptométer (30 kHz)
- nagyfrekvenciás szuszceptométer (9,1 MHz)

Jelen munkámban ezen berendezések közül a nagyfrekvenciás szuszceptométerrel egybeépített, gyors lemágnesezésre is alkalmas különleges mérőrendszert dolgoztam ki. Ez magában foglalta egyrészt a minta gyors átmágnesezését lehetővé tévő különleges kialakítású mágnes megtervezését és megépítését, valamint a nagyfrekvenciás szuszceptométer-szonda megtervezését és annak megépítését.

A nanovason történt méréseket ismertető részben megállapítottam, hogy az FC és ZFC görbék szétválása, ami a spin-üveg állapot kialakulását jellemző bifurkációs pontban következik be, jóval 300 K felett van. Az üvegállapotra jellemző metastabil energiaállapotot kísérletileg a mágnesezettség időbeli változásának mérésével mutattam ki. A relaxáció logaritmikus függvény szerint írható le, ami azt jelenti, hogy a mágneses részecskék közötti kollektív kölcsönhatás határozza meg energiaállapotukat. A k mágneses viszkozitási együttható függ a ΔB mágneses tér változástól és a hőmérséklettől is. További mérésekkel megállapítottam, hogy a relaxáció sebessége független az alkalmazott térváltozás irányától, csak a térváltozás nagysága határozza meg. Megállapítottam azt is, hogy a szemcsék közötti határréteg oxigén tartalma erősen befolyásolja a nanoszemcsék közötti szuperparamágneses kölcsönhatást és a rendszerben blokkolást idéz elő.

A perovszkit szerkezetű anyagokon történt méréseket ismertető részben áttekintettem a $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_{3-\delta}$ ($x=0.025, 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.3$) összetételű anyagokon végzett mérések eredményeit. A relaxációs folyamat elemzésével megállapítottam, hogy a rendszer a vas doppelás hatására a spin-klaszterüveg állapotból a spinüveg állapot felé csúszik és ezzel együtt a ferromágneses jelleg megszűnik. Meghatároztam a spin ill. spinklaszter befagyási folyamatra jellemző energiagátakat valamint megállapítottam, hogy a vizsgált hőmérsékleti tartomány nagy részén a folyamatok kvázi egyensúlyi dinamikát tükröznek.

A dolgozatom utolsó részében a $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ szupravezetőkön végrehajtott méréseket tárgyaltam. A szupravezető egykristálynak az AC szuszeptibilitását mértem a hőmérséklet, a gerjesztő AC és DC mágneses tér függvényében ($B \parallel \hat{c}$ elrendezés volt mind az AC, mind a DC tér esetében). A veszteségi csúcshoz tartozó hőmérsékleteket a gerjesztő tér függvényében ábrázolva a fluxus mozgást jellemző két típusú mechanizmus jól el tudtam különíteni egymástól. Mindkét tartományban a T_p csúcshőmérséklet az amplitúdótól hatvány függvény szerint függ. A nagyobb amplitúdójú tartományban a hatványkitevő értékére $q=0,75$ -öt kaptam. Az AC szuszeptibilitás frekvenciafüggéséből a termikus aktivációhoz tartozó aktivációs potenciált is meg tudtam határozni. Nulla külső DC mágneses tér esetén a potenciál gát mélységére $0,75$ eV értéket kaptam, mely az irodalmi értékekkel jó egyezést mutat [11]. Az örvényrendszer dinamikai viselkedésének tanulmányozására dolgoztam ki a gyors lemágnesezéses technikát. A külső tér megszüntetése után nem ad a rendszer azonnali választ, körülbelül 100 ms idő kell ahhoz, hogy az örvényrendszer elhagyja a mintát.

6 Summary

In my PhD thesis I have reviewed the results of the magnetic relaxation measurements on magnetic systems which can be characterized by nanoscale structures. The results of the instrument development works were given, as well. In the bibliography I have summarized the informations regarding the relaxation of the three different material families which were measured.

In the section about the measuring system the description of the developments of the system carried out by me is given. At the relaxation measurements the following instruments were used:

- Vibrating sample magnetometer
- Audiofrequency susceptometer (30 kHz)
- High frequency susceptometer (9,1 MHz)

In this paper I have given a detailed description of the measurement system for fast magnetic relaxation with the high frequency susceptometer. It involves the design and the building of the special magnet capable to change the magnetic field vary fast and the participation in the desing and the biulding of the high frequency susceptometer.

In the section about the measurements on the nanostructured iron I have stated that the disjunction of the FC, ZFC magnetization curves which occurs at the bifurcal point characterizing the appearance of the spin-glass state is over 300 K. I have pointed out the metastable energy state signing the spin-glass state by means of the measurement of the time dependence of the magnetization. The relaxation is logarithmic which means that their energy state is determined by the collective interaction between the magnetic particles. The k magnetic viscosity coefficient depends on the temperature and the ΔB change of the magnetic field. Further investigations revealed that the rate of the relaxation is independent on the direction of the magnetic field change but is determined by the volume of the magnetic field change. I have stated that oxygen content of the boundary between the particles strongly determines the superparamagnetic interaction between the nanoparticles, introducing a block into the system.

In the next section I have outlined the results of the measurements performed on the $\text{La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_{3-\delta}$ ($x=0.025, 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.3$)

materials. By means of the analyzing the relaxation process I have found that the system slips towards the spin-glass state from the spincluster state as a result of the iron doping and this involves the disappearance of the ferromagnetic property. I have determined the energy barriers characterizing the spin and spin-cluster blocking process. I have found that relaxation processes in the greatest part of the investigated temperature range show quasiequilibrium dynamics.

In the last part of the paper I have discussed the measurements carried out on $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ superconducting materials. I have measured the AC susceptibility of the superconducting single crystal as a function of the amplitude of the applied magnetic field (the $\mathbf{B} \parallel \hat{c}$ arrangement was used in the case of the AC and the DC field). I was able to separate the two types of mechanisms characterizing the vortex motion by means of displaying the temperatures of the loss peak (T_p) as a function of the applied field. The T_p temperature depends on the amplitude through power law functions. I have determined 0.75 for the exponent in the region of the greater amplitude. It was possible to determine the activation potential of the thermal activation by means of the frequency dependence of the AC susceptibility. I have got 0.75 eV as the value of the energy barrier in case of zero DC magnetic field which is in good agreement with the result in the literature [11]. I have developed the fast demagnetising technics to investigate the dynamical behaviour of the vortex system. The system responds only after 100 ms after removing the applied magnetic field.

7 Köszönetnyilvánítás

Köszönettel tartozom témavezetőmnek Dr. Vad Kálmánnak, amiért ilyen érdekes és előremutató témát ajánlott nekem, valamint a berendezés tervezése, a mérések végrehajtása illetve a mérési eredmények kiértékelése során nyújtott segítségért. Nemkülönben a dolgozat megírása során mutatott önzetlen segítsége miatt.

Köszönettel tartozom az MTA Atomki vezetőségének amiért azután is lehetővé tették a dolgozat befejezését miután már nem az Intézet munkatársa vagyok.

Köszönettel tartozom Dr. Mészáros Sándornak amiért az intézet elhagyása után is folytathattam munkámat a laboratóriumban, valamint a mérőberendezés elektronikai egységeinek megtervezésért, csakúgy mint a mért eredmények kiértékelésében nyújtott segítségéért.

Köszönettel tartozom Dr. Hakl Józsefnek a berendezés megépítésében, a mérések végrehajtása során, a mért eredmények kiértékelése során valamint jelen dolgozat megírásában nyújtott segítségéért.

Köszönettel tartozom Dr. Nándori Istvánnak a mérési eredmények kiértékeléséhez nyújtott segítségéért.

Köszönet illeti Farkas Bertalant és Kis Ferencet a mérőberendezés elkészítésében nyújtott segítségükért.

Köszönöm Botos Károlynak a laboratóriumi munkához szükséges informatikai háttér karbantartását.

8 Irodalomjegyzék

- [1] L. Del Bianco, A. Hernando, M. Multigner, C. Prados, J.C. Sánchez-López, A. Fernández, C.F. Conde and A. Conde, *J.Appl.Phys.* **84** (1998) 2189.
- [2] R. Alben and J.J. Becker, *J.Appl.Phys.* **49** (1978) 1653.
- [3] E. Bonetti, L. Del Bianco, D. Fiorani, D. Rinaldi, R. Caciffo and A. Hernando, *Phys.Rev.Lett.* **83** (1999) 2829.
- [4] R. von Helmholt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz and K. Samwer, *PRL* **71** (1993) 233.
- [5] M. Uehara, S. Mori, C. H. Chen and S-W. Cheong, *Nature* **399** (1999) 560.
- [6] J. M. D Coey, M. Viret and S. von Molnar, *Adv. Phys* **48** (1999) 167.
- [7] Y. Tokura and Y Tamioka, *J. Magn. Magn. Mater.* **200** (1999) 1.
- [8] S. Yamaguchi, Y. Okimoto and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **55** (1977) R8666.
- [9] M. Itoh, I. Natori, S. Kubota and K. Motoya, *J. Magn. Magn. Mater* **140-144** (1995) 1811.
- [10] S. Mukherjee, R. Ranganathan, P. S. Anilkumar and P. A. Joy, *Phys. Rev. B* **54** 9267–9274 (1996)
- [11] M. Imada, A. Fujimori, Y. Tokura *Rev. Mod. Phys.* 70, 1039–1263 (1998)
- [12] S. Yamaguchi, Y. Okimoto, H. Taniguchi and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **53** (1996) R2926–R2929.
- [13] R. Caciuffo, D. Rinaldi, G. Barucca, J. Mira, J. Rivas, M.A. Señaris-Rodríguez, P.G. Radaelli, D. Fiorani and J.B. Goodenough, *Phys. Rev. B* **59** (1999) 1068.
- [14] P. L. Kuhns, M. J. R. Hoch, W. G. Moulton, A. P. Reyes, J. Wu and C. Leygton, *Phys. Rev. Lett.* **91**, (2003) 127202.
- [15] J. Wu and C. Leighton, *Phys. Rev B* **67** (2003) 174408.
- [16] L. Golovanov, L. Mihaly and A.R. Moodenbaugh, *Phys. Rev. B* **53**, (1996) 8207.

- [17] R. Mahendiran and A. K. Raychaudhuri, Phys. Rev. B **54** (1996) 16044.
- [18] A.J. Millis, Nature **392** (1998) 147.
- [19] A. Barman, M. Ghosh, S. Biswas, S.K. De and S. Chatterjee, Appl. Phys. Lett **71** (1997) 3150.
- [20] Y. Sun, X. Xu, and Y. Zhang, Phys. Rev. B **62**, (2000) 5289.
- [21] Z. Németh, Z. Klencsár, E. Kuzmann, Z. Homonnay, A. Vértes, J.M. Greneche, B. Lackner, K. Kellener, G. Gritzner, J. Hakl, K. Vad, S. Mészáros, and L. Kerekes, Eur. Phys. J. B **43**, (2005) 297.
- [22] V.G. Sathe, A.V.Pimpale, S.B.Roy, J. Magn. Magn. Mat. **189** (1998) 346.
- [23] A. Maignan, C. Martin, M. Hervieu and B. Raveau, Eur. Phys. J. B **13** (2000) 41.
- [24] A. S. Ioselevich, Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 1067.
- [25] M. Tinkham, Introduction to superconductivity, McGraw-Hill Inc., New York, 1996.
- [26] Ch. P. Poole, H.A. Farach and R.J. Creswick, Superconductivity, Academic Press, Inc., London, 1995.
- [27] R.D. Parks, Superconductivity, Marcel Dekker Inc., New York, 1969.
- [28] Kerekes L., Diplomamunka, MTA Atomki, 1997.
- [29] S. Gangopadhyay, H.C. Hadjipanayis, B. Dale, C.M. Sorensen, K.J. Klabunde, V. Papaefthymiou and A. Kostikas, Phys. Rev. B **45** (1992) 9778.
- [30] M.Itoh, I. Natori, S. Kubota and K. Motoya, J. Phys. Soc. Jpn **63**, (1994) 1486.
- [31] J. Souletie and J. L. Tholence Phys. Rev. B **32**, 516 (1985)
- [32] J. Mydosh, Spin Glasses, An experimental introduction, Francis et Taylor, London, 1993
- [33] J. M. De Teresa, M. R. Ibarra, J. García, J. Blasco, C. Ritter, P. A. Algarabel, C. Marquina, and A. del Moral, Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 3392.
- [34] I. G. Deac, J. F. Mitchell and P. Schiffer Phys. Rev. B **63** (2001) 172408.

- [35] R. S. Freitas, L. Ghivelder, F. Damay, F. Dias and L. F. Cohen, *Phys. Rev. B* **64** (2001) 144404.
- [36] S. Mukherjee, R. Ranganathan, P. S. Anilkumar and P. A. Joy, *Phys. Rev. B* **54** (1996) 9267.
- [37] X. X. Zhang, G.H.Wen, G. Xiao and S. Sun, *J. Magn. Magn. Mat* **261** (2003) 21.
- [38] B. Sas, F. Pontier, F. I. B. Williams, K. Vad, B. Keszei, L. F. Kiss, S. Mészáros, *Journal de Physique IV*. **9** (1999) 45; F. Portier, Gy. Kriza, B. Sas, L. F. Kiss, I. Pethes, K. Vad, B. Keszei, F.I.B. Williams, *Phys. Rev. B* **66** (2002) 511.
- [39] J. R. Clem, AC losses in type II superconductors, Technical report no. IS-M. 280, Ames Laboratoy, Ames Iowa.
- [40] J. H. P. M. Emmen, V. A. Brabers and W. J. M. de Jonge, *Physica C* **176** (1991) 137.
- [41] D. Giller, A. Shaulov, T. Tamegai and Y. Yeshurun, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 3698.

Relaxációs jelenségek vizsgálata mágneses rendszerekben

Értekezés a doktori (Ph.D.) fokozat megszerzése érdekében a fizika
tudományágban

Írta: Kerekes László, okleveles fizikus

Készült a Debreceni Egyetem fizika tudományok doktori iskola szilárdtestfizika és
anyagtudomány programja keretében

Témavezető: Dr. Vad Kálmán

A doktori szigorlati bizottság:

elnök: Dr.
tagok: Dr.
Dr.

A doktori szigorlat időpontja: 200...

Az értekezés bírálói:

Dr.
Dr.

A bírálóbizottság:

elnök: Dr.
tagok: Dr.
Dr.
Dr.
Dr.

Az értekezés védésének időpontja: 200...