

Sveučilište u Zagrebu
Prirodoslovno-matematički fakultet

Marija Došlić

Istraživanje dinamike virova u blizini supravodljivog
prijelaza mjerenjem nelinearne radiofrekventne
vodljivosti

Zagreb, 2014.

Ovaj rad je izrađen na Fizičkom odsjeku Prirodoslovno-matematičkog fakulteta, pod vodstvom prof.dr.sc. Miroslava Požeka te je predan na natječaj za dodjelu Rektorove nagrade u akademskoj godini 2013./2014.

Popis i objašnjenje kratica korištenih u radu

GL – Ginzburg-Landau

BKT – Berezinsky-Kosterlitz-Thouless

RF – Radio-frekventno

HTSC – Visokotemperaturna supravodljivost

HgBCCO – $\text{HgBa}_2\text{CaCuO}_{8+\delta}$

HgBCO – $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$

YBCO – $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$

LSCO_x – $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

LBCO_x – $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$

Bi2212 – $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$

Sadržaj

1	Uvod	1
1.1	Supravodiči druge vrste	1
1.1.1	Dinamika virova	3
1.2	Kuprati	4
1.3	Nelinearna vodljivost	6
1.3.1	Coffeyev model	8
1.3.2	Prijelaz Berezinskog, Kosterlitz i Thoulessa (BKT)	12
1.4	Eksperimentalne mogućnosti	15
2	Eksperimentalni postav i mjerenje	16
2.1	Princip mjerenja	17
2.2	Konstrukcija probe	18
2.3	Tijek mjerenja	21
2.4	Uzorci	23
2.4.1	Niobij	23
2.4.2	$\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$	23
2.4.3	$\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$	24
2.4.4	$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	24
2.4.5	$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$	24
3	Rezultati i rasprava	26
3.1	Grijanje	26
3.2	Niobij	26
3.3	$\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$	28
3.4	$\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$	29
3.5	$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$	32
3.6	$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	34
3.7	Univerzalnost trećeg harmonika	37
4	Zaključak	39

1 Uvod

1.1 Supravodiči druge vrste

Supravodljivost je otkrivena 1911., kada je Heike Kamerlingh Onnes izmjerio pad otpora žive ispod mjerljive vrijednosti na 4 K. Budući da je otpor sam po sebi dinamički efekt, činjenica da pada na nulu ispod neke temperature nije bila dovoljna da se sa sigurnošću utvrdi je li novonastalo stanje termodinamička faza, ili se javlja samo kao dinamička pojava. Eksperiment koji je potvrdio tezu o novom stanju materije izveli su Meissner i Ochsenfeld 1933., kada su pokazali da pri prelasku u supravodljivo stanje supravodič postaje savršeni dijamagnet, neovisno o redoslijedu hlađenja i uključivanja magnetskog polja. Teorijsko objašnjenje dijamagnetizma supravodiča dala su braća London, uvođenjem makroskopske mnogočestične valne funkcije.

Amplituda valne funkcije kakvu predlaže Londonova teorija se ne mijenja u prostoru i ne ovisi o magnetskom polju, što općenito nije slučaj. Ginzburg i Landau uveli su parametar uređenja oblika

$$\Psi(\mathbf{r}) = |\Psi(r)|e^{i\theta(r)}, \quad (1)$$

preko kojeg je gustoća slobodne energije postulirana kao

$$f = f_{n0} + \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 + \frac{1}{2m^*}|i\hbar\nabla + e * \mathbf{A})\Psi|^2 + \frac{b^2}{1\mu_0}, \quad (2)$$

pri čemu je f_{n0} gustoća slobodne energije u normalnom stanju, b lokalna vrijednost gustoće magnetskog toka, dok se konstante α i β mogu izraziti preko ravnotežne vrijednosti parametra uređenja i kritičnog polja.¹

Minimizacijom slobodne energije po vektorskom potencijalu \mathbf{A} dobije se prva Ginzburg-Landauova (GL) diferencijalna jednačba za gustoću supravodljive struje

$$-\mathbf{J}_s = \frac{\nabla^2 \mathbf{A}}{\mu_0} = \frac{ie^*\hbar}{2m^*}(\Psi^*\nabla\Psi - \Psi\nabla\Psi^*) + \frac{e^{*2}}{m^*}|\Psi|^2\mathbf{A} \quad (3)$$

koja se po analogiji $|\Psi_0(T)|^2 = n_s$, pri čemu je n_s broj supravodljivih elektrona, svodi na Londonovu u odsutnosti gradijenta parametra uređenja. Slijedi Ginzburg-Landauova (GL) dubina prodiranja

$$\lambda_{GL}^2(T) = \frac{m^*}{e^{*2}\mu_0|\Psi_0(T)|^2}. \quad (4)$$

Minimizacijom gustoće slobodne energije po Ψ^* dobijemo drugu GL dieferencijalnu jednadžbu

$$0 = \alpha(T)\Psi + \beta|\Psi|^2\Psi + \frac{1}{2m^*}(i\hbar\nabla + e^*\mathbf{A})^2\Psi \quad (5)$$

iz koje slijedi karakteristična duljina duž koje se amplituda parametra uređenja značajno mijenja, koju zovemo duljinom koherencije

$$\xi_{GL}^2(T) = \frac{\hbar|\Psi_0(T)|^2}{2m^*\mu_0 H_c^2(T)}. \quad (6)$$

Za razliku od veličina dobivenih iz Londonove jednadžbe, GL dubina prodiranja i duljina koherencije su temperaturno ovisne. Omjer ovih dviju veličina

$$\kappa_{GL} = \frac{\lambda_{GL}}{\xi_{GL}} \quad (7)$$

određuje energiju na granici supravodljive i normalne faze u magnetskom polju. Ako je dubina prodiranja veća od duljine koherencije ($\kappa > 2^{-1/2}$), energija na granici postaje negativna, što implicira nestabilnost sustava na miješanje normalne i supravodljive faze koje teži maksimizirati površinu razgraničenja. Postojanje miješanog stanja koje predviđa GL teorija odbacivalo se kao nefizikalno do 1936., kada su Shubnikov i njegovi suradnici izmjerili upravo takvo ponašanje nekih supravodljivih legura.²

Supravodiči koje karakterizira miješano stanje nazivaju se supravodičima II vrste, ili “tvrdim” supravodičima. Zbog negativne energije na granici, slobodnu energiju minimizira maksimalno miješanje, pa se normalna faza javlja unutar supravodljive u vlaknastim područjima kroz koje prolazi jedan kvant magnetskog toka Φ_0 . Zbog supravodljivih kružnih struja koje se javljaju oko vlakana normalne faze, ta područja nazivamo virovima ili vrtlozima (eng. *vortex*). U samom središtu vira, amplituda parametra uređenja pada na nulu, dok je izvan njega maksimalna. Promjer vira je stoga ograničen duljinom duž koje se $|\Psi(r)|$ može značajno promijeniti, što je upravo GL duljina koherencije, ξ . Supravodič druge vrste dakle karakteriziraju dva kritična polja, H_{c1} , pri kojemu polje počne prodirati u materijal, i H_{c2} kada nestaje supravodljivost. Tipična kritična polja su reda veličine $H_{c1} \sim 100-1000$ Oe, a $H_{c2} \sim 10-100$ T.^{3,4} Uz kritična polja vezane su i kritične struje, koje su također puno veće u supravodičima druge vrste, što ih u usporedbi sa supravodičima prve vrste čini pogodnijima za primjene u tehnologiji.

1.1.1 Dinamika virova

U čistom materijalu se virovi u statičnoj situaciji slažu u tzv. Abrikosovljevu rešetku. Ako kroz materijal u miješanom stanju pustimo struju \mathbf{J} , na virove usmjerene duž vektora \mathbf{n} djeluje generalizirana Lorentzova sila (Magnusova sila), okomito na smjer toka struje:⁵

$$\mathbf{F}_L = \Phi_0[\mathbf{J} \times \mathbf{n}] \quad (8)$$

Pri gibanju virova dolazi do disipacije pa supravodič druge vrste u kojem se virovi relativno slobodno gibaju zbog toga ima konačan otpor. Ukoliko je gibanje virova onemogućeno njihovim zapinjanjem za nečistoće ili defekte (eng. *pinning*) ovaj otpor nestaje.

Razmotrimo podrijetlo disipacije do koje dolazi uslijed gibanja virova. Vir se sastoji od kvazičestičnih pobuđenja u jezgri, i okružen je suprafluidom. Kada se vir giba brzinom \mathbf{v} , kvazičestice se ne gibaju s njime, nego dolazi do pretvorbe Cooperovih parova iz suprafluida ispred vira u normalno stanje unutar vira, dok kvazičestice iza vira ponovno prelaze u suprafluid. Pri prelasku suprafluida u normalno stanje energija se gubi, dok se u suprotnom procesu dio vraća. Zbog konačnog relaksacijskog vremena, ukupni učinak gibanja vrtloga je gubitak energije, odnosno disipacija, i možemo uvesti efektivnu viskoznu silu:⁵

$$\mathbf{F}_v = \eta\mathbf{v} = \frac{\mu_0 H_{c2} \Phi_0}{\rho_n} \mathbf{v} \quad (9)$$

pri čemu je ρ_n otpornost materijala u normalnom stanju.

S obzirom da tipični materijal ima nečistoće i defekte rešetke, slobodno gibanje virova je ograničeno i može se opisati gibanjem u efektivnom potencijalu zapinjanja koji oscilira u prostoru (eng. *pinning potential*). Do zapinjanja može doći zbog elektromagnetskih efekata, npr. prisutnost izolatorske nečistoće deformira gustoću struje u blizini defekta. Drugi izvor zapinjanja je lokalni, kada se pokaže energijski povoljnije da se vir “zalijepi” za defekt ili nečistoću u normalnom stanju, i tako smanji kondenzacijsku energiju.

Ovisno o frekvenciji pobude, gibanje vrtloga bit će kvalitativno različito. Pri visokim frekvencijama dolazi do oscilatornog gibanja oko lokalnog mini-

muma potencijala, koji se u slučaju slabe pobude može aproksimirati harmoničkim. Povratna sila

$$\mathbf{F}_{pin} = k_{pin}\mathbf{x} \quad (10)$$

je tada linearna, a fizikalno podrijetlo joj je elastičnost vrtloga i slaba interakcija s izvorima zapinjanja. Pri niskim frekvencijama postoji mogućnost da vrtlog prijeđe u susjednu “jamu”, odnosno javlja se pojava koju nazivamo “puzanje” toka (eng. *flux creep*), i koja vodi do slabe disipacije i nelinearnosti u strujno naponskoj karakteristici. Pri jako visokim frekvencijama pobude supravodič uđe u režim tečenja toka (eng. *flux flow*), u kojem se virovi gibaju konstantnom brzinom, i materijal ima efektivnu otpornost ρ_f koja je usporediva s otpornošću u normalnom stanju.⁶ Na niskim frekvencijama dakle dominira efekt zapinjanja, i odgovarajuća konstanta k_{pin} , dok je na višima bitnija efektivna viskoznost η . Karakteristična frekvencija

$$\omega_0 = \frac{k_{pin}}{\eta} \quad (11)$$

okvirno razgraničuje ta dva režima. Frekvencija otkvačivanja u klasičnim supravodičima iznosi 10-100 MHz,⁷ dok je u visokotemperaturnim tipično reda veličine 10 GHz, dok u YBCO-u doseže i 200 GHz.⁵ Na temperaturama i poljima bliskim kritičnima dominira tečenje toka, te ne možemo više govoriti o karakterističnoj frekvenciji.

Na najnižim frekvencijama $\omega \ll \omega_0$, preostaje vrlo mala, ali mjerljiva otpornost, uzrokovana puzanjem toka, koja nestaje na niskim temperaturama. Ispostavlja se da u prisutnosti potencijala zapinjanja ne dolazi do formacije dugodosežno uređene Abrikosovljeve rešetke⁸ već do staklastog prijelaza, ispod kojeg su vrtlozi efektivno zamrznuti i disipacija nestaje.^{9,10}

Osim što je fizikalno značajno, dobro razumijevanje dinamike vrtloga neophodno i za tehnološke primjene, koje se zbog relativno velikih kritičnih polja, struja i temperatura, uglavnom ograničavaju na supravodiče u miješanom stanju, posebice visokotemperaturne supravodiče (HTSC).

1.2 Kuprati

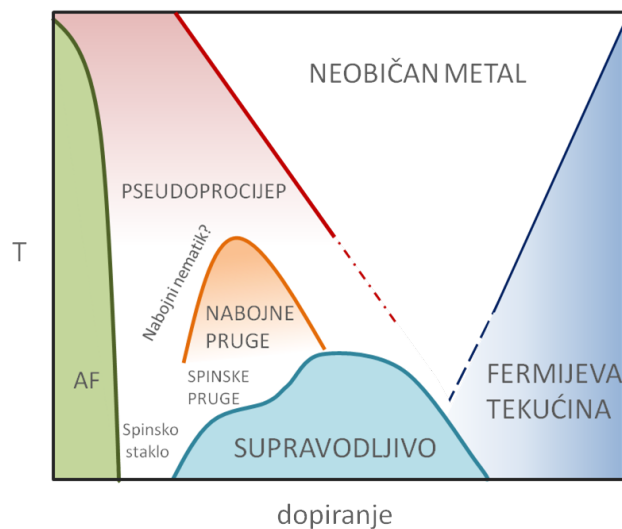
Spoj na kojem su Berndoz i Mueller otkrili visokotemperaturnu supravodljivost 1986. bio je $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ (LBCO),¹¹ s temperaturom prijelaza

$T_c=30$ K. Osim što je temperatura prijelaza ovog spoja bila najviša do tada poznata, ovo otkriće pomaknulo je granicu od ~ 25 K koliko je predviđala BCS mikroskopska teorija supravodljivosti. Ubrzo su otkriveni drugi keramički spojevi, s još višim temperaturama prijelaza, npr. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ (YBCO) - 94 K, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) - 87 K i $\text{HgBa}_2\text{CaCuO}_{8+\delta}$ (Hg-BCCO) - 134 K.¹²

Točan mehanizam kojim se ostvaruje supravodljivost u ovim spojevima nije poznat. Svi su građeni od ravnina bakrovog oksida, između kojih može biti jedan ili više slojeva atoma, često rijetkih zemalja, te lanci kisika i bakra. Stehiometrijski kuprati su Mottovi izolatori (uz iznimku $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ ¹³), a supravodljivost se javlja ako se u strukturu unese dodatni naboj - dopiranjem. Dodani naboj može biti elektron ili šupljina, ali šupljinski dopirani spojevi generalno imaju više temperature prijelaza i kritična polja. Ova asimetrija je svakako značajna, i svaka sveobuhvatna teorija supravodljivosti u kupratima mora uzeti u obzir kvalitativnu razliku svojstava elektronski i šupljinski dopiranih spojeva.

U ovom radu zadržat ćemo se na šupljinski dopiranim spojevima. Ovisno o spoju, dopiranje može biti intersticijsko ili supstitucijsko. Primjer intersticijski dopiranog spoja je YBCO (porodica "123"), u kojem se između atoma bakra izvan ravnina umeću atomi kisika koji tvore CuO lance. Ubačeni kisici zbog elektronegativnosti privlače elektrone iz ravnina, ostavljajući tako šupljine. $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) i drugi članovi obitelji "214" su pak supstitucijski dopirani: na mjesta trovalentnog lantana dolazi divalentni stroncij, što isto tako uvodi šupljine u ravnine. Ovisno o dopiranju mijenjaju se temperaturna svojstva spoja, što se uobičajeno prikazuje faznim dijagramom.

Iako postoje razlike među obiteljima spojeva, velika većina kuprata ima fazni dijagram sličan onom prikazanom na Slici 1. U nedopiranom stanju, kuprati su antiferomagnetski uređeni. Zbog jakih korelacija, elektroni su praktički učvršćeni na mjestu, što rezultira izolatorskim svojstvima. Supravodljivost se na konačnoj temperaturi javlja pri nekoj koncentraciji šupljina, a temperatura supravodljivog prijelaza raste do maksimuma na optimalnom dopiranju. S daljnjim povećanjem dopiranja T_c pada, ugrubo prateći oblik parabole. Unos dodatnih naboja dopiranjem uzrokuje nehomogenosti u sustavu, pa se osim supravodljive javljaju i druge faze elektronskog uređenja:



Slika 1: Tipični fazni dijagram kuprata dopiranog šupljinama.^{12,15}

nabojno i spinsko prugasto uređenje, te pseudoprocijep. Smatralo se da je za samu supravodljivost ključno antiferomagnetsko stanje, dok se pojava ostalih elektronskih faza pripisivala svojstvima konkretnih materijala. U novije vrijeme se intenzivno istražuju i ostale faze, budući da postoje indicacije da su neodvojivo povezane sa supravodljivošću.¹⁴

1.3 Nelinearna vodljivost

Mjerenje vodljivosti je metoda karakterizacije materijala, od posebne važnosti kod istraživanja jako koreliranih elektronskih sustava, kakvi su i visokotemperaturni supravodiči. Kod takvih materijala netrivialno ponašanje vodljivosti izravno upućuje na promjenu u elektronskim interakcijama, koje određuju fazni dijagram. U konvencionalnim vodičima je omjer struje i napona konstantan, budući da je polje u materijalu dovoljno malo da inducira samo linearan odgovor, odnosno vrijedi Ohmov zakon. Odstupanje $I - V$ karakteristike od linearne u samo nekom (temperaturnom) području, dakle ne kao posljedica jakosti pobude, pruža izravan uvid u netrivialne elektronske procese.

Ako na uzorak koji pokazuje nelinearnu karakteristiku primijenimo izmjeničan napon, strujni odgovor će odstupati od sinusoidalnog vala. Ovo

odstupanje može se izraziti kao suma niza viših harmonika, dakle odgovora na frekvencijama koje su višekratnici frekvencije pobude. Izražavanje nelinearnosti u terminima viših harmonika često olakšava interpretaciju rezultata i identifikaciju pozadinskih fizikalnih procesa. Nelinearnost je sveprisutna u čvrsto-stanjskim sustavima - javlja se u procesima različitog podrijetla i mehanizama nastanka. Primjerice, i staklasti prijelaz u tekućinama i pojava prugastog nabojnog uređenja popraćeni su nelinearnim odgovorom.

Poznato je da se u supravodičima javljaju viši harmonici oko T_c te je predloženo više uzroka: Nelinearnost samih GL jednadžbi, odnosno ovisnost parametra reda o struji i polju,^{16,17} spontani lom simetrije,¹⁸ intragranularna Joshepsonova interakcija,^{18,19} ovisnost kritične struje o polju (za jake pobude),²⁰ efektivno dvodimenzionalno ponašanje i Berezinsky-Kosterlitz-Thouless prijelaz,²¹ te nelinearno gibanje virova.^{5,22} Uz to, Mishonov i suradnici su istaknuli utjecaj grijanja uzorka, koji može dominirati nelinearnim odgovorom.²³

Dinamika virova može biti nelinearna iz nekoliko razloga.⁵ U području niskih frekvencija, pogotovo kod istosmjernih mjerenja, kada se virovi gibaju u režimu puzanja, nelinearni odgovor je posljedica snažne ovisnosti potencijala zapinjanja o struji. Na višim frekvencijama je ovaj doprinos zanemariv. Drugi izvor nelinearnosti je neharmoničnost potencijala zapinjanja. U režimu srednjih frekvencija, kada je gibanje vrtloga dominirano oscilacijama u jami potencijala zapinjanja, pretpostavka harmoničnog potencijala i linearne povratne sile vrijedi samo za vrlo male pomake vira. Pri većim strujama također dolazi do stvaranja dodatnih vrtloga, čiji broj ovisi o struji, što uzrokuje nelinearan odgovor. Ovaj mehanizam je posebno bitan kod tankih uzoraka, budući da je tada utjecaj velike gustoće struje na rubovima značajniji.

Detaljnije ćemo razmotriti dva nepovezana uzroka nelinearnosti: utjecaj prostornog gradijenta magnetskog polja nastalog gibanjem virova, te Berezinsky-Kosterlitz-Thouless (BKT) prijelaz.

1.3.1 Coffeyev model

M. W. Coffey je predložio općeniti model, koji opisuje samosuglasni odgovor vrtloga u magnetskom polju na gradijent magnetskog polja uzrokovan njihovim gibanjem.²⁴ Zanimaruje se utjecaj kritičnih pojava, poput konačnosti kritične struje, i nelinearnost koja nastaje kao posljedica magnetske povijesti. Zbog toga je pretpostavka modela da je efekt zapinjanja generalno značajno manji od doprinosa puzanja i toka virova, što u blizini temperature prijelaza stoji, neovisno o frekvenciji.⁵

Polazimo od modela dva fluida, koji pretpostavlja postojanje normalne i supravodljive faze, kroz svaku od kojih teče odgovarajuća struja \mathbf{J}_n i \mathbf{J}_s , zbog čega je ukupna struja

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}_n + \mathbf{J}_s. \quad (12)$$

Za normalnu struju vrijedi Ohmov zakon:

$$\mathbf{J}_n = \sigma_n \mathbf{E} \quad (13)$$

Supravodljiva struja u prisutnosti virova ovisi o magnetskom polju:

$$\nabla \times \mathbf{J}_s = -\frac{1}{\mu_0 \lambda^2} (\mathbf{B} - \mathbf{B}_v) \quad (14)$$

pri čemu je \mathbf{B}_v lokalno polje koje stvaraju virovi. Svakim od n_v virova prolazi jedan kvant magnetskog toka. Smjer im je zadan vanjskim magnetskim poljem \mathbf{B}_0 :

$$\mathbf{B}_v \equiv n_v \phi_0 \hat{\mathbf{B}}_0 \quad (15)$$

Uvrštavanjem jednadžbi 12-14 u Maxwellove jednadžbe za vrtložnosti polja

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\dot{\mathbf{B}}, \quad \nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J}. \quad (16)$$

Slijedi izraz za lokalnu varijaciju u gustoći vrtloga

$$\mathbf{B}_v = \mathbf{B} - \lambda^2 \nabla^2 \mathbf{B} + D_{nf}^{-1} \lambda^2 \dot{\mathbf{B}}. \quad (17)$$

Koeficijent difuzije u normalnom stanju definiran je kao $D_{nf} = \rho_n / \mu_0$ i pretpostavlja konstantu vodljivost normalnog stanja. Iz jednadžbe (17) vidimo da do prostorne varijacije u broju vrtloga dolazi iz dva razloga: nepotpunog

Meissnerovog efekta i konačne dubine prodiranja λ te prisutnosti normalnog fluida.

Brzina gibanja vrtloga \mathbf{v} zadana je općenitom reakcijom

$$\mathbf{v} = \mu_v(\omega, B, T)\mathbf{F}_L \quad (18)$$

preko dinamičke mobilnosti μ_v i Lorentzove sile \mathbf{F}_L , definirane u jednadžbi 8. Preostaje nam još povezati brzinu vrtloga i magnetsko polje, što možemo preko jednadžbe kontinuteta za silnice:

$$\frac{\partial \mathbf{B}_v}{\partial t} = -\nabla \times (\mathbf{B}_v \times \mathbf{v}). \quad (19)$$

Kombinacijom jednadžbi (19), (18), (16) i (14) dolazimo do jednadžbe za magnetsko polje iz koje je eliminirana brzina i polje nastalo zbog vrtloga, te je sav njihov utjecaj sveden na mobilnost μ_v . U jednodimenzionalnom slučaju, kada zanemarimo utjecaj rubova i uzorak promatramo kao poluprostor $z < 0$, pri čemu je magnetsko polje u smjeru z , jednadžba poprima oblik

$$\lambda^2 \partial_{xx} \dot{B} - \lambda^2 D_{nf} \ddot{B} - \dot{B} = -\frac{\phi_0 \mu_v}{\mu_0} \partial_x \left\{ \left[B - \lambda^2 \partial_{xx} B + D_{nf}^{-1} \lambda \dot{B} \right] \partial_x B \right\} \quad (20)$$

Rješenje se može naći uvrštavanjem formalnog razvoja

$$B(x, t) = \sum_{n=0}^{\infty} B_n \epsilon^n \quad (21)$$

što vodi na konačnu jednadžbu, iz koje se rekurzivno mogu odrediti harmonici:

$$\lambda^2 \partial_{xx} \dot{B}_n - \lambda^2 D_{nf} \ddot{B}_n - \dot{B}_n + \frac{1}{2} \omega \delta_v^2 \partial_{xx} B_n = -\frac{\phi_0 \mu_v}{\mu_0} \partial_x \left\{ \sum_{m=1}^{n-1} \left[B_m - \lambda^2 \partial_{xx} B_m + D_{nf}^{-1} \lambda \dot{B}_m \right] \partial_x B_{m-n} \right\}. \quad (22)$$

Veličina δ_v je efektivna kompleksna dubina prodiranja izmjeničnog polja (eng. *skin depth*),

$$\delta_v^2 \equiv \frac{2\rho_v}{\mu_0 \omega}, \quad (23)$$

određena frekvencijom ω i efektivnom otpornošću

$$\rho_v = B_0 \phi_0 \mu_v. \quad (24)$$

Rješenja možemo pretpostaviti u obliku

$$B_j = B_{j0} e^{-ij\omega t} \left(\sum_{k=1}^{k=j} e^{-kp_k x} \right), \quad (25)$$

iz čega slijedi prvi harmonik

$$B_1 = B_{10} e^{-i\omega t} e^{-x/\lambda_1} \quad (26)$$

Uvrštavanjem izraza (26) u jednadžbu (22) dobijemo algebarsku jednadžbu. Rješenje je dubina prodiranja

$$\lambda_1^2 = \frac{\lambda^2 + 1/2i\delta_v^2}{1 - 2i\lambda^2\delta_n^{-2}}. \quad (27)$$

Na drugi harmonik je nametnut rubni uvjet da iščezava na površini. Uvrstimo

$$B_2 = B_{20} e^{-2i\omega t} \left(e^{-2x/\lambda_1} + e^{-x/\lambda_2} \right), \quad (28)$$

u jednadžbu (22), koja sada postaje rekurzivna algebarska jednadžba, koju rješava dubina prodiranja drugog harmonika

$$\lambda_2^2 = \frac{\lambda_1^2 + 1/4i\delta_v^2}{1 - 4i\lambda^2\delta_n^{-2}} \quad (29)$$

i amplituda

$$B_{20} = \frac{B_{10}^2 \lambda_1^{-2} \delta_v^4 (1 - 2i\lambda^2 \delta_n^{-2})}{4B_0 3\lambda^2 + 1/2i\delta_v^2 - 4i\delta_n^{-2}}. \quad (30)$$

Više harmonike struje možemo odrediti iz magnetske indukcije pomoću Ampereovog zakona, te konačno rješenje iznosi:

$$J(x, t) = \frac{B_{10}}{\mu_0 \lambda_1} e^{-i\omega t} e^{-x/\lambda_1} + \frac{B_{20}}{\mu_0} e^{-2i\omega t} \left(\frac{2}{\lambda_1} e^{2x/\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} e^{-x/\lambda_2} \right). \quad (31)$$

U veličini δ_v je sadržana cjelokupna dinamika virova. Općenito ovisi o režimu gibanja vrtloga u kojem se sustav nalazi, ali u pretpostavci slabog zapinjanja općenita otpornost postaje isključivo disipativna:⁷

$$\rho_v = \frac{B_0 \phi_0}{\eta} \frac{1}{1 + i\frac{\omega_0}{\omega}} \rightarrow \frac{B_0 \phi_0}{\eta} \quad (32)$$

iz čega slijedi:

$$\delta_v = \sqrt{\frac{2B_0\phi_0}{\eta\mu_0\omega}} \quad (33)$$

Dubina prodiranja i skina su temperaturno ovisne:⁴

$$\lambda = \frac{\lambda(0)}{\sqrt{(1-w_0)[1-B_0/B_c(T)]}} \quad (34)$$

$$\delta = \frac{\delta_n}{\sqrt{1-(1-w_0)[1-B_0/B_c(T)]}} \quad (35)$$

gdje veličina $w_0 = \left(\frac{T}{T_c}\right)^4$ označava udio normalnih elektrona na $B_0 = 0$ u standardnom modelu dvaju fluida. Kritično polje se mijenja s temperaturom prema

$$B_c(T) = B_c(0) \left[1 - (T/T_c)^2\right]. \quad (36)$$

Uvrstimo li ovisnosti (36), (34) i (35) u jednadžbe (27) i (29) dobijemo temperaturnu ovisnost kompleksnih dubina prodiranja ispod temperature prijelaza. Iznad temperature prijelaza Londonova dubina prodiranja divergira, pa se kompleksna dubina prodiranja svodi na normalnu dubinu skina:

$$\lambda_1^2 = \frac{\lambda^2 + 1/2i\delta_v^2}{1 - 2i\lambda^2\delta_n^2} \rightarrow \frac{i\delta^2}{2}. \quad (37)$$

$$\lambda_2^2 = \frac{\lambda_1^2 + 1/4i\delta_v^2}{1 - 4i\lambda^2\delta_n^2} \rightarrow \frac{i\delta^2}{4} \quad (38)$$

$$B_{20} \rightarrow 0. \quad (39)$$

U programskom jeziku *Python* napisali smo program koji računa ovisnost drugog harmonika za dano pobudno polje $B = B_0 + B_1$ o temperaturi. Uvrštavamo izraze za dubine prodiranja (27) i (29) te amplitudu drugog harmonika (30) u općeniti izraz za drugi harmonik struje (31, 27), (29) i (30), uzimajući u obzir temperaturne ovisnosti iz izraza (34) - (36). Za svaki materijal zadajemo kritičnu temperaturu T_c , Londonovu dubinu prodiranja na 0 K λ_0 , dubinu skina u normalnom stanju δ_n , više kritično polje na 0 K $B_c(0)$ te otpornost u normalnom stanju ρ_n . Vrijednosti ovih parametra za razne materijale mogu se pronaći u literaturi.

Važno je primijetiti kako jednadžba (22) i ostale izvedene iz nje vrijede samo u granici malih pobuda (u odnosu na konstanto polje) i u režimu viskoznog gibanja vrtloga.

1.3.2 Prijelaz Berezinskog, Kosterlitz i Thoulessa (BKT)

Eksperimentalno je potvrđeno²⁵ da kuprati pokazuju vrlo anizotropna transportna svojstva – u LBCO-u i BSCCO-u je vodljivost u ravnini 10^4-10^5 puta veća od one duž osi c .^{21,26} Smanjenje ove anizotropije s dopiranjem, usprkos rastu strukturne anizotropije (ortorompske rešetke) upućuje na pozadinsku elektronsku dinamiku. Postoji i anizotropnost vodljivosti u ravnini koja je također posljedica elektronskih korelacija,²⁷ ali je manja (u YBCO-u $\sim 2-3$), a pripisuje se jednodimenzionalnim spinskim strukturama (prugama).

Ovako značajna anizotropija u vodljivosti i kritičnim poljima, kao i činjenica da su upravo ravnine bakra i kisika zajednički čimbenik u svim visokotemperaturnim supravodičima, potaknula je razvoj teorija kako supravodljivost nastaje u ravninama, dok do trodimenzionalne koherencije dolazi zbog Joshepsonovog vezanja među njima.²⁸ Supravodič je tada opisan kao stog gotovo nepovezanih ravnina, svaka od kojih se ponaša kao 2D sustav.

Fazni prijelaz u dvodimenzionalnom sustavu bitno je različit od onog u trodimenzionalnom. Mermin i Wagner su 1966 pokazali kako u 2D sistemima ne postoji dugodosežno uređenje parametra reda, a time ni pravi fazni prijelaz. Berezinskii, i neovisno Kosterlitz i Thouless, pokazali su da je moguć kvazi-dugodosežan red, kod kojeg korelacija parametra uređenja opada potencijalski. Na visokim temperaturama, u neuređenoj fazi, očekuje se eksponencijalno trnjenje, dakle postoji točka u kojoj se mijenja korelacijska funkcija parametra uređenja: BKT fazni prijelaz.²⁹

Uzrok raspada supravodljivosti u 2D sustavu bez vanjskog polja su termalno inducirani dvodimenzionalni vrtlozi, koji se efektivno ponašaju kao naboji. Energija vezana za stvaranje jednog vrtloga je

$$E = E_c + q^2 \ln \left(\frac{L}{\xi} \right), \quad (40)$$

pri čemu je E_c energija kondenzacije, q efektivni “naboj” vira, L mjera veličine sustava, a ξ karakteristična dimenzija vrtloga. U granici $L \rightarrow \infty$, dakle u sustavu na $T = 0$ u kojem nema rubnih efekata, stvaranje jednog vrtloga termičkim fluktuacijama nije termodinamički moguće. S porastom temperature moramo uzeti u obzir entropiju. Broj položaja na kojima se

virtlog može smjestiti je $\sim L^2/\xi^2$, što znači da je entropija

$$S = 2k_b \ln \left(\frac{L}{\xi} \right). \quad (41)$$

Helmholtzova slobodna energija $F = E - TS$ na kritičnoj temperaturi mijenja predznak, pa slijedi $T_{BKT} = \frac{q^2}{2k_b}$. Dakle, slobodni virtlozi mogu nastati nakon neke konačne temperature. S druge strane, energija potrebna za stvaranje para virtloga je:

$$E_p = 2E_c + q^2 \ln \left(\frac{r}{\xi} \right), \quad (42)$$

gdje je r udaljenost među virtlozima. Neovisno o dimenziji sustava, na svakoj temperaturi se mogu stvarati parovi. Na T_{BKT} divergira očekivana udaljenost virtloga i antivirtloga unutar para i počinje formacija slobodnih virtloga.

Kako je u blizini T_c zapinjanje zanemarivo, zanemarimo li rubne efekte (uključujući mehanizam predložen u Coffeyevom modelu) od slobodnih virtloga očekujemo Ohmski doprinos otporu. Ispod temperature BKT prijelaza T_{BKT} nestaju slobodni virtlozi i preostaju samo parovi, na koje ne djeluje ukupna Lorenzova sila, zbog čega nestaje disipativni otpor.

Kod parova s druge strane postoji mogućnost “ionizacije” – kratkotrajnog razdvajanja članova para i njihovo slobodno (disipativno) gibanje. Kako virtlozi ostaju razdvojeni konačno vrijeme, koje ovisi o sili, a time i struji, očekujemo nelinearne strujno naponske karakteristike ispod T_{BKT} .^{29,30}

Konkretno, u slučaju da kroz uzorak teče struja J , energija para virantivir postaje:

$$E_p = 2E_c + q^2 \left(\ln \frac{r}{\xi} - F_L r \right), \quad (43)$$

što možemo izraziti preko kritične struje rasparivanja virova $J_c = \hbar n_s e / (2m\xi)$:⁵

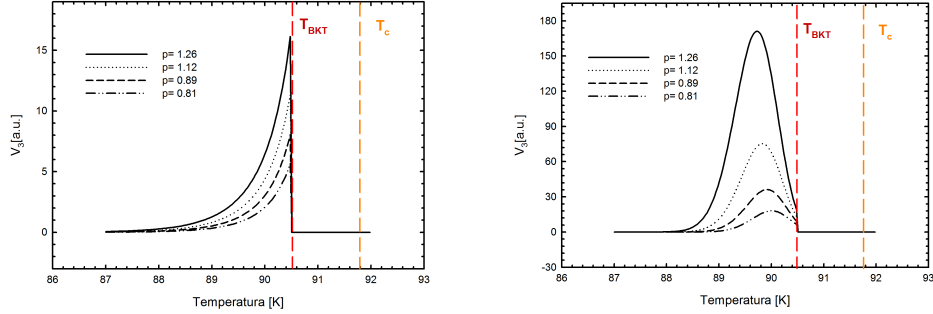
$$E_p = 2E_c + q^2 \ln \left(\frac{J}{J_c} \right). \quad (44)$$

Brzina nastanka virtloga dana je izrazom

$$\Gamma \sim \exp \left[-\frac{E_p}{k_b T} \right] \sim \left(\frac{J}{J_c} \right)^{q^2/k_b T} \quad (45)$$

iz čega slijedi broj virtloga, n_v , u ravnotežnom stanju. Slijedi relacija za otpor uzorka:

$$R \sim \xi^2 \left(\frac{J}{J_c} \right)^{q^2/k_b T} \sim \xi^2 \left(\frac{J}{J_c} \right)^{a(T)-1} \quad (46)$$



(a) Treći harmonik za $a_0=500$, $T_{BKT}=90.5$ K, $T_c=91.8$ K
(b) Treći harmonik za $a_0=50$, $T_{BKT}=90.5$ K, $T_c=91.8$ K

Slika 2: Treći harmonici izraza (47), za dvije različite vrijednosti parametra a_0 . Zbog velikog broja slobodnih parametra, iz ovakog modela ne možemo izvući pouzdan zaključak.

Uzimajući u obzir temperaturne ovisnosti J_c i ξ dobiva se konačni izraz za ovisnost napona o struji:

$$V(J, T) \sim \frac{\text{sgn}|J|^{a(T)}}{I_{c0}^{a(T)-1} (1 - T/T_{c0})^{\frac{3a-1}{2}}} \quad (47)$$

Koeficijent $a(T)$ je temperaturno ovisan:

$$a(T) = 1 \quad \text{za } T > T_{BKT}$$

$$a(T) = a_0 - (a_0 - 3) \frac{T}{T_{BKT}} \quad \text{za } T < T_{BKT} \quad (48)$$

Iznad temperature prijelaza je odziv vodljivosti linearan, na samoj temperaturi prijelaza naglo skoči na 3 (skok Kosterlitz i Nelsona) i dalje raste do vrijednosti a_0 .^{5,31}

U programskom jeziku *Mathematica* izračunali smo Fourierove komponente trećeg harmonika izraza (47), za struju oblika $J = A \cos(\omega t)$. Na Slici 2 je prikazana ovisnost trećeg harmonika za niz snaga, za dva različita parametra a_0 . Vidimo da su rezultati kvalitativno drugačiji, i da nemaju istu ovisnost o snazi. Fizikalno, je parametar a_0 koeficijent nelinearnosti na $T = 0K$, ali u realnom slučaju dolazi do smrzavanja vrtloga, zbog čega izraz (46) više ne vrijedi. Također, mijenjanjem odnosa T_{BKT} , T_{c0} i J_c mogu se dobiti vrlo različiti rezultati, a kako su svi ovi parametri slobodni, značaj

dobivenih rezultata je upitan. Budući da nemamo mogućnost određivanja T_{c0} , T_{BKT} i J_c nezavisnim tehnikama (npr. linearnom vodljivošću), u ovom radu nećemo izravno prilagođavati mjerene vrijednosti rezultatima modela. Kvalitativno, očekujemo maksimum oko T_{BKT} .

Pitanje postojanja BKT prijelaza u kupratima nije razjašnjeno do kraja. Rezultati mjerenja strujno naponskih karakteristika idu u prilog postojanju dvodimenzionalnog prijelaza u LBCO-u,^{32,33} YBCO-u^{5,31} i BSCCO-u.²¹ Postoje radovi koji osporavaju te rezultate,²⁵ a činjenica da je temperatura prijelaza u navedena tri spoja smještena redom iznad, na i ispod temperature prijelaza u supravodljivo stanje, ukazuje na neuniverzalnost, ili nedovoljno razumijevanje problematike.

1.4 Eksperimentalne mogućnosti

Usprkos postojanju velikog broja eksperimentalnih rezultata i predloženih modela, još uvijek nije razjašnjeno pitanje nelinearnog odgovora u blizini supravodljivog prijelaza. Otežavajući čimbenik je činjenica da je velik broj mjerenja proveden unutar nekoliko godina po otkriću kupratne supravodljivosti, kada su uzorci, pogotovo monokristalni, bili upitne kvalitete. Utjecaj istosmjernog magnetskog polja istražen je u nekoliko eksperimenata,³⁴⁻³⁶ ali nedostaje sustavni pregled. Također, većina eksperimenata provedena na YBCO-u, uglavnom samo jednom dopiranjem bliskom optimalnom, što otežava formiranje sveobuhvatne teorije. Od velike je važnosti stoga sustavno mjeriti nelinearni odgovor u ovisnosti o dopiranjem na drugim familijama supravodiča, na različitim dopiranjima, te u širokom rasponu DC polja i snaga.

Važno je napomenuti i da su svi gore navedeni eksperimenti provedeni ili kontaktnim mjerenjima, dakle na frekvencijama ispod 100 kHz, ili mikrovalno, odnosno na 10-100 GHz, što ostavlja prostora za istraživanja u radiofrekventnom području. Kako bi se razjasnilo podrijetlo nelinearnosti, pogotovo uloga virova, ključno je mjeriti u što većem rasponu frekvencija.

2 Eksperimentalni postav i mjerenje

Prevladavajuća metoda mjerenja istosmjerne i niskofrekventne vodljivosti je van der Pauwova metoda četiri kontakta – dva strujna i dva naponska. Uz očite teškoće koje se javljaju pri učvršćivanju kontakata na malene uzorke (monokristalni uzorci supravodiča su rijetko veći od 1 mm^3), ovakva mjerenja su ograničena frekvencijom. Na višim frekvencijama ($>10 \text{ kHz}$) naime postaju značajni parazitski kapaciteti kontakata, koji uzrokuju nepredvidive, i često neponovljive, rezultate. Utjecaj kapaciteta spojeva može se umanjiti povećanjem tlaka na kontaktima, čime se riksira mehaničko oštećenje uzorka.³⁷ Mjerenja na višim frekvencijama je stoga bolje provoditi beskontaktnim metodama temeljenim na indukciji i detekciji struja u uzorku.

Kako inducirani signal raste s frekvencijom pobude, mjerenja na malim uzorcima, ili uzorcima s malim promjenama vodljivosti, bolje je vršiti na što višoj frekvenciji. S druge strane, kada se valna duljina pobude bliži dimenzijama vodiča u postavu, na frekvenciji od oko $\sim 10 \text{ MHz}$, dolazi do pojave dodatnih refleksija i distorzija signala zbog razlike u impedanciji.³⁸ Mjerenja na još višim frekvencijama zahtijevaju promjenu pristupa, i temelje se na detekciji pomaka rezonantne frekvencije i Q-faktora rezonantne šupljine. Mikrovalna mjerenja omogućuju veliku preciznost, ali, kako se dubina prodiranja EM polja smanjuje s frekvencijom, uglavnom odražavaju površinska ili lokalna svojstva.^{18,39}

Dodatni izazovi se javljaju pri izravnom mjerenju viših harmonika. Na niskim temperaturama javljaju se temperaturne oscilacije uzrokovane prolaskom struje kroz uzorak, te je teško razlučiti intrinzične nelinearne efekte od signala uzrokovanog periodičnom promjenom temperature. U mikrovalnom području je efekt grijanja zanemariv, ali izravno mjerenje viših harmonika zahtjeva šupljine s dvostrukom rezonancijom - na osnovnoj frekvenciji te frekvenciji željenog harmonika, zbog čega je mjerenje nefleksibilno.

Eksperimentalni postav koji smo koristili omogućuje izravno mjerenje viših harmonika u radiofrekventnom području od $\sim 1\text{-}100 \text{ MHz}$. Razvijen je u NMR laboratoriju, u sklopu predmeta “Samostalni istraživački seminar”, od strane autorice i Damjana Pelca.

2.1 Princip mjerenja

Promotrimo dvije koaksijalne zavojnice unutar kojih je smješten uzorak. Kroz jednu - pobudnu - teče struja frekvencije ω

$$J = J_0 \sin \omega t, \quad (49)$$

koja u području gdje se nalazi uzorak stvara magnetsko polje u fazi. U našem eksperimentalnom postavu je pobuda dodatno amplitudno modulirana audio-frekvencijom Ω te je amplituda zapravo

$$J_0 = J'_0 \sin \Omega t, \quad (50)$$

ali radi jednostavnosti tu ovisnost nećemo eksplicitno pisati u daljnjem računu. U uzorku se inducira električno polje

$$E \sim \frac{dB}{dt} \sim E_0 \omega \cos \omega t. \quad (51)$$

Kao odgovor na električno polje u uzorku se induciraju kružne struje. Općenito ne vrijedi Ohmov zakon, i struje su oblika

$$j = \sigma_1 E + \sigma_3 E^3 + \dots \quad (52)$$

pri čemu se parni harmonici u velikoj većini slučajeva ne javljaju zbog simetrije na vremensku obrativost. U slučaju postojanja vanjske veličine koja lomi simetriju, npr. magnetskog polja, mogu se javiti i parni harmonici. Veličine σ_1 i σ_3 su linearna i nelinearna vodljivost. Iz trigonometrijskih relacija slijedi izraz za amplitudu struje:

$$j = \sigma'_1 E_0 \omega \cos \omega t + \sigma'_3 E_0^3 \omega^3 \cos 3\omega t + \dots \quad (53)$$

Ove kružne struje opet uzrokuju magnetsko polje duž z osi, koje u drugoj (detekcijskoj) zavojnici inducira napon. Posljedično, struja koja poteče drugom zavojnicom ima komponentu na frekvenciji 3ω .

$$j \sim I_0^3 \omega^4 \sigma_3 \sin 3\omega t \quad (54)$$

U općenitom slučaju σ_3 je kompleksna veličina, što znači da se signal može javiti i izvan faze pobude. Gore opisana razmatranja nisu ograničena na slučaj vodljivih uzoraka. Relevantna pobuda može biti vanjsko magnetsko polje, s odgovarajućom (nelinearnom) magnetskom susceptibilnošću.

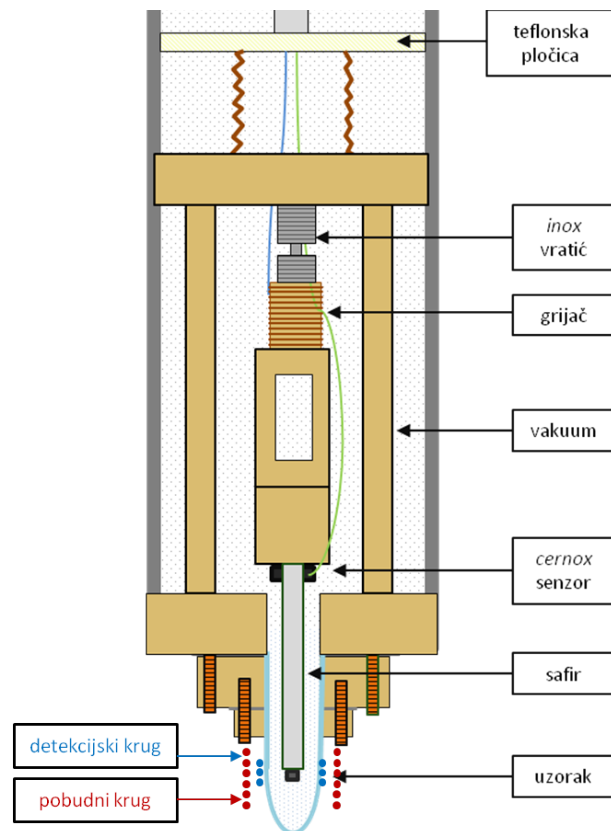
2.2 Konstrukcija probe

Pri mjerenju vodljivosti, fizikalno relevantna veličina najčešće nije apsolutni iznos vodljivosti, nego njezina relativna temperaturna ovisnost. Kako se u supravodičima zanimljiva fizika odvija na niskim temperaturama, mjerenja treba provoditi u što širem temperaturnom rasponu, počevši od najniže dostižne temperature. To je omogućeno uranjanjem cijele probe u kriogenu tekućinu, što ohladi čitavi postav, uključujući električne krugove, na konstantu baznu temperaturu. Uzorak je smješten u vakuumirano okruženje, na nosač koji je termalno slabo povezan s vanjskim dijelom probe. Grijač je postavljen u blizini uzorka, što je omogućilo kontrolirano mijenjanje temperature. Kako se za vrijeme mjerenja mijenjala samo temperatura uzorka, dok je temperatura tijela probe i svih elektroničkih komponenti držana konstantnom, pouzdano znamo kako je svaka temperaturna ovisnost posljedica svojstava uzorka, a ne artefakt nastao zbog promjene uvjeta eksperimenta.

Probu čini cijev od nehrđajućeg čelika unutar koje se postiže visoki vakuum ($\sim 10^{-6}$ mbar). Vrh probe je zatvoren zataljenom cjevčicom od električki neaktivnog kvarcnog stakla, kako je prikazano na Slici 3. Svi spojevi koji su uronjeni u kriogenu tekućinu zabrtvljeni su indijem. Unutar cijevi, pri vrhu probe, smješten je bakreni držač na kojem se nalaze grijač, senzor i safirni držač uzorka.

Uzorak je vakuuskom N-mašću pričvršćen na safirni štapić koji je jednim krajem zalijepljen za bakreni držač. Safir je pogodan materijal za nosač budući da je električni izolator, a ima veliku toplinsku vodljivost. Neposredno uz safir, na bakreni držač, nataknut je kalibrirani *cernox* temperaturni senzor, a kako bismo osigurali da je temperatura koju očitava senzor jednaka temperaturi safira, a time i uzorka, termički kontakt dodatno je poboljšan slojem Apiezon N-masti. Oko drugog kraja držača namotan je grijač od otporne žice.

Čitava bakrena konstrukcija je s ostatkom probe povezana samo na jednom mjestu, metalnim vratićem koji određuje termički kontakt uzorka i okoline. Ovisno o potrebama trenutnog mjerenja, možemo iskoristiti jedan od dva vratića: Za mjerenja na višim temperaturama (~ 50 K) pogodniji je tanji vratić od nehrđajućeg čelika—koji je lošiji vodič topline—kako bi se safir



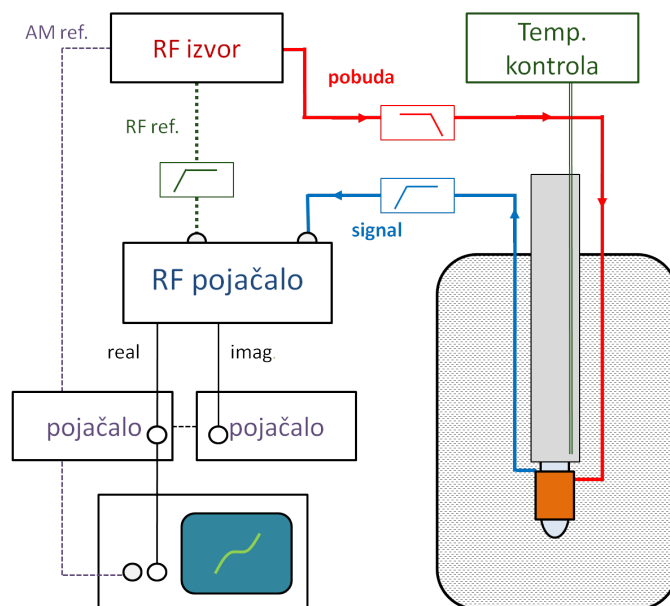
Slika 3: Shematski prikaz glave probe. U probi je visoki vakuum, svi spojevi su zabrtvljeni indijem ili zalemljeni. Termički kontakt između uzorka i okoline omogućen je samo preko vratića iznad grijača. Cernox senzor postavljen je uz safirni nosač, koji je zavijen u komad bakra u kontaktu s grijačem. Dvodne žice i ostatak probe termički su izolirani preko opruga od slabo vodljivog materijala.

što sporije hladio i kako bi pri grijanju isparilo što manje kriogene tekućine. Za mjerenja na nižim temperaturama (~ 20 K) potreban je bolji kontakt s kriogenom tekućinom, i koristi se deblji vratić od mjedi. Takvim postavom se postiže niža minimalna temperatura, ali je potrebna veća snaga grijača za istu promjenu temperature. Kako bismo dosegнули najniže temperature (< 15 K) u probu smo upuštali plinoviti helij, što bi poboljšalo termički kontakt s okolinom. Povratnu spregu senzora i grijača kontrolira LakeShore sustav za temperaturnu kontrolu, a žice grijača i senzora kroz vakuum izlaze na glavi probe, učvršćene teflonskim pločicama i termički izolirane od okoline.

Oko zataljene epruvete, u ravnini s uzorkom, namotane su pobudna i detekcijska zavojnica. Kako su u radiofrekventnom području valna duljina pobude i dimenzije dovodnih vodiča usporedivi, zbog razlike u impedanciji dolazi do refleksija i deformacija signala. Konstrukcija pobudnog i detekcijskog sklopa je stoga nešto kompliciranija od sustava opisanog u 2.1, iako je princip rada jednak.

Pobudni sklop je zavojnica od lakirane bakrene žice na koju je nanesen tanaki uzemljeni sloj srebrne boje.⁴⁰ Time je kapacitet raspoređen duž zavojnice. Frekventna karakteristika takvog sklopa odgovara serijskom spoju niza niskopropusnih filtara i impedancija je prilagođena na 50Ω u rasponu frekvencija od 0-25 MHz tako da je omjer stojnih valova (*SWR*) manji od 1.2, što znači da je manje od 0.8% snage reflektirano. Zavojnica je učvršćena dvokomponentnom epoksidnom smolom i natakuta na staklenu cjevčicu.

Unutar pobudnog sklopa, a oko staklene cjevčice, namotana je zavojnica od samo nekoliko namotaja, od otporne manganinske žice, koja je dio *RLC* rezonantnog kruga s rezonancijom na frekvenciji ~ 60 MHz. Prilikom uranjanja u kriogenu tekućinu dolazi do male promjene svojstava kruga, zbog čega se prilikom svakog mjerenja pomoću mrežnog analizatora *Rohde&Schwarz ZVL3* odredi rezonantna frekvencija detekcijskog kruga i postavi odgovarajuća pobuda na preciznost od 0.01 MHz. Pobudna frekvencija se tada postavlja na jednu trećinu (za mjerenje trećeg harmonika), odnosno polovicu (za drugi harmonik) rezonantne frekvencije detekcijskog kruga.



Slika 4: Shematski prikaz mjerenja. Amplitudno modulirani signal frekvencije ω generira se u RF izvoru, filtrira i dovodi do uzorka. Inducirane nelinearne struje uzrokuju magnetsko polje koje inducira signal na rezonantnoj frekvenciji detekcijskog kruga. Signal prolazi kroz visokopropusni filter i dolazi do RF fazno osjetljivog pojačala koji ga demodulira. Realni i imaginarni dio izlaza odvođe se u dva zasebna niskofrekventna pojačala, koja su zaključana na frekvenciju modulacije izvora. Osciloskop u $X - Y$ modu služi kao vizualna kontrola tijekom mjerenja.

2.3 Tijek mjerenja

Tijek mjerenja shematski je prikazan na Slici 4. Signal frekvencije ω u megahercnom rasponu iz radiofrekventnog izvora SRS DS345 amplitudno je moduliran u cijelom rasponu frekvencijom od 13 Hz. Frekvenciju pobude dodatno stabilizira vanjska referenca od 10 MHz koju daje frekventni brojač HP 5342A s kvarcnim rezonatorom. Pobuda iz izvora prolazi kroz visokopropusni filter i dolazi do vrha probe na kojem je nerezonantni pobudni sklop.

Ako se u uzorku induciraju struje na rezonantnoj frekvenciji detekcijskog kruga, inducira se signal koji se drugim polukrutim koaksijalnim kabelom izvede iz kriostata i prolazi kroz visokopropusni filter kako bi se uklonilo sig-

nal na frekvenciji pobude. Filtriranje pobudne frekvencije prije pojačanja je ključno, budući da svako pojačalo ima određenu nelinearnu karakteristiku što bi uzrokovalo parazitske signale na frekvencijama viših harmonika. Signal se dovede do RF faznog pojačala SR844 koje služi kao detektor i demodulator. RF pojačalo je zaključano na referencu s TTL izlaza izvora, propuštenu kroz viskopropusni filter koji eliminira prvi harmonik. RF fazno pojačalo zaključava na najjači preostali harmonik, odnosno treći. Kvalitetnije zaključavanje i manji fazni šum postiže se korištenjem množitelja frekvencija vlastite izrade. Izrađen je po shemi kakvu su predložili Wenzel i suradnici,⁴¹ a u slobodno dostupnom programu *TINA* napravljena je simulacija takvog sklopa i vrijednosti komponenti su prilagođene traženom frekventnom rasponu.

Dva izlaza s faznog pojačala su proporcionalna nekoj kombinaciji realne (u fazi s pobudom) i imaginarne (izvan faze) komponente ulaznog signala na referentnoj frekvenciji. Naše fazno pojačalo omogućuje četiri različite mogućnosti: realnu i imaginarnu komponentu, apsolutnu vrijednost te iznos faznog pomaka. Nominalno je irelevantno koji kanali se koriste, budući da je informacija sadržana u svakom paru ekvivalentna. Ispostavlja se da pri velikim osjetljivostima vrijednost faze više fluktuirá, što znači da s pouzdanošću možemo analizirati samo apsolutnu vrijednost. U većini mjerenja su izlazi koje smo koristili bili apsolutna vrijednost i imaginarna komponenta, koja je namještanjem RF faze postavljena na nulu na višim temperaturama. Zbog nelinearnosti izvora i pojačala, postoji konstantni pozadinski signal, koji ne ovisi o temperaturi. Ukoliko imaginarna komponenta nije zanemariva, ovaj sustavni pomak se ne može samo oduzeti. Apsolutna vrijednost signala bez pozadine R_{sig} može se izraziti preko mjerene apsolutnu vrijednost R (u kojoj je uključen pozadinski signal R_0) i imaginarne komponente y :

$$R_{sig} = \sqrt{\left(R_0 - \sqrt{R^2 - y^2}\right)^2 + y^2}. \quad (55)$$

Valja naglasiti kako ovaj izraz vrijedi samo ako je pozadina imaginarne komponente y uklonjena, što se postiže namještanjem faze na višim temperaturama.

Kako bi se minimizirao pozadinski RF šum, signal prolazi još jedan stupanj pojačanja. Izlazi s radiofrekventnog fazno osjetljivog pojačala odvode

se na dva odvojena niskofrekventna fazno osjetljiva pojačala SRS 830 koja su zaključana na frekvenciju amplitudne modulacije signala. Standardnom GPIB komunikacijom izlazi s pojačala i sustava za temperaturnu kontrolu spojeni su na osobno računalo gdje su grafički prikazani i analizirani u realnom vremenu, pomoću programa napisanog u programskom jeziku *LabView*

Kao vizualna kontrola mjerenja poslužio je osciloskop u $X - Y$ modu rada. Trenutna amplituda pobudne struje spojena je na X kanal, dok je na Y kanal spojen radiofrekventni signal. Za mijenjanje vanjskog magnetskog polja koristili smo komercijalni supravodljivi 9 T magnet tvrtke *Oxford Instruments*.

2.4 Uzorci

Mjerali smo na ukupno dvanaest uzoraka: niobiju i jedanaest visokotemperaturnih supravodiča iz četiri obitelji. Svi uzorci na kojima su provedena mjerenja su monokristali, osim YBCO-a dopiranog cinkom, koji je orijentirani prah.

2.4.1 Niobij

Niobij je konvencionalan supravodič druge vrste, s temperaturom prijelaza na 9.25 K. Uzorci visoke čistoće imaju vrlo uski supravodljivi prijelaz (~ 0.01 K).⁴² Uzorak koji na kojem je mjerena nelinearni odgovor je monokristal, dimenzija 2mm x 3mm x 0.5mm.

2.4.2 $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$

$\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ (HgBCO) pripada obitelji živinih kuprata, neki od kojih imaju najviše dosad otkrivene temperature supravodljivih prijelaza (134 K). Uzorak na kojem smo mjerili ima temperaturu prijelaza oko 94 K, a karakterizira ga izrazito čista kristalna struktura. Zbog toga što nema strukturne prijelaze ni distorzije, HgBCO je idealan za proučavanje svojstava supravodljivog prijelaza u CuO_2 ravninama.¹² Kod nekih supravodiča su naime strukturne nehomogenosti korelirane s elektronskim efektima, poput pojave vala gustoće naboja ili spina, a čiji utjecaj na mjereni signal nije uvijek moguće

razlučiti od intrinzičnog odgovora ravnina. Mjerali smo na optimalno dopiranom uzorku, označenom s OP75, koji nam je ustupio prof.dr.sc. Neven Barišić, s Tehničkog sveučilišta u Beču.

2.4.3 $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$

Optimalno dopirani $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ (LBCO) ima $T_c \sim 30$ K. Uzorak na kojem smo mjerili je dopiran s $p = 1/8$, i dio je istog monokristala na kojem su Tranquada i suradnici mjerili linearnu otpornost i druga transportna svojstva.³³ Iako se trodimenzionalna supravodljivost javlja tek na 4 K, izmjerili su eksponencijalni pad ravninske otpornosti i divergenciju anizotropnosti na 18 K, što su pripisali BKT prijelazu u ravninama.

2.4.4 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) ima relativno nisku temperaturu prijelaza u usporedbi s ostalim kupratima - tek 38 K na optimalnom dopiranju. Pokazuje strukturni prijelaz iz tetragonske u ortorompsku fazu, te naznake površinskog prugastog uređenja.⁴³ Konkretni uzorci su isti koje je dr.sc. Mihael Grbić koristio za istraživanje supravodljivih fluktuacija,¹² a sintetizirao ih je dr. O.P. Vajk u laboratoriju prof.dr. M.Grevena na sveučilištu Stanford.

2.4.5 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ (YBCO), pogotovo optimalni, vjerojatno je najistraživaniji kupratni supravodič. Otkriven je relativno brzo nakon otkrića visokotemperaturne supravodljivosti, i bio je prvi kojem je temperatura prijelaza (93 K) viša od temperature vrenja dušika (77K). Dopiranje u YBCO porodici je intersticijsko, odnosno atomi kisika se smještaju između bakrovih ravnina, i formiraju CuO lance. Pitanje postojanja nabojnog uređenja, i drugih elektronskih faza u YBCO-u nije razjašnjeno, iako nedavni eksperimenti ukazuju na postojanje barem fluktuirajućeg prugastog reda oko dopiranja $p \sim 0.125$.⁴⁴

Jedini uzorak na kojem smo mjerili, a koji nije bio monokristal je orijentiran prah optimalno dopiranog YBCO-a u kojeg su ugrađeni atomi cinka.

Procijenjena koncentracija cinka u ravninama je oko 4%. Sintetizirali su ga Damjan Pelc i Tonči Cvitanić, na Fizičkom odsjeku PMF-a.⁴⁵

3 Rezultati i rasprava

3.1 Grijanje

Mishonov i suradnici^{23,46} su pokazali kako oscilacije temperature uzrokovane prolaskom struje mogu uzrokovati nelinearni odgovor, dapače, da dominira na većini temperatura. Provjerimo utjecaj grijanja na našim materijalima i frekvencijama kratkim računom “na prste”. Očito je da na frekvencijama većima od neke karakteristične frekvencije ω_T temperaturne oscilacije neće moći pratiti pobudu, te će doći do neznatnog, vremenski konstantnog grijanja. Veličine koje određuju termalna svojstva uzorka su karakteristična dimenzija uzorka L , gustoća ρ , toplinski kapacitet c_p te termička vodljivost κ . Dimenzionalnom analizom dolazimo do procijenjene vrijednosti karakteristične frekvencije

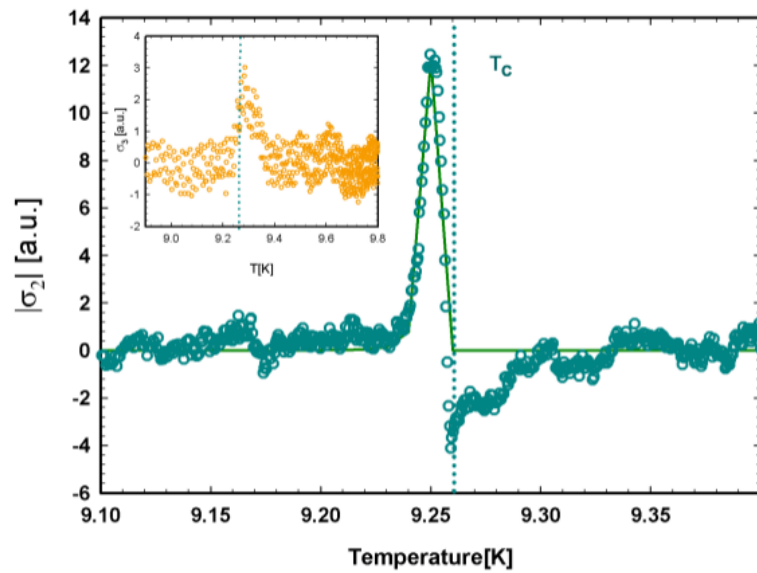
$$\omega_T \sim \frac{\kappa}{\rho c_p L^2}. \quad (56)$$

Uvrštavajući realistične parametre dobivamo red veličine ω_T za monokristale ~ 10 kHz, što je mnogo manje od frekvencija u našem eksperimentu.

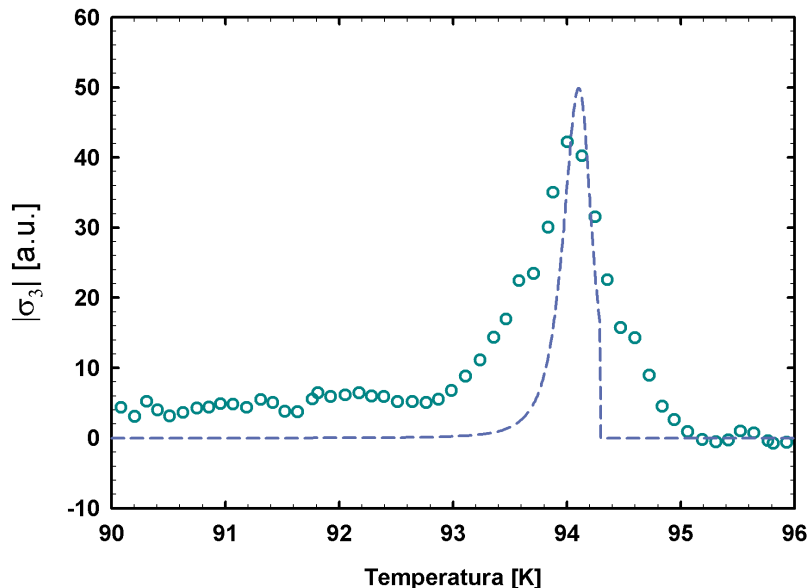
3.2 Niobij

Rezultat mjerenja drugog harmonika na niobiju prikazan je na Slici 5. Mjerenje vrijednosti su prikazane točkama, a rješenje Coffeyevog modela u režimu toka fluksona punom crtom. Korišteni su realistični parametri za niobij⁴⁷ i vidimo zadovoljavajuće slaganje u području ispod temperature prijelaza. Ponašanje signala iznad temperature prijelaza ne može se objasniti Coffeyevim modelom, koji predviđa strogi nestanak nelinearnosti na T_c . S obzirom da su supravodljive fluktuacije u konvencionalnim supravodičima uske do granice nemjerljivosti,¹⁰ efekt iznad T_c je vjerojatno eksperimentalni artefakt, ili neki drugi nelinearni elektrodinamički efekt koji nije obuhvaćen modelom gibanja virova.

Treći harmonik u niobiju je znatno manji od drugog, kao što se vidi iz umetka na Slici 5, što je u skladu s predviđanjima Coffeyevog modela. S druge strane, kako je uglavnom smješten *iznad*, a ne ispod T_c , upitno je je li podrijetlo maksimuma u trećem harmoniku isto kao onog u drugom.



Slika 5: Drugi harmonik mjereno na monokristalu niobija. Točke prikazuju mjerene vrijednosti, a puna crta rješenje Coffeyevog modela, s parametrima preuzetima iz literature. Dubina prodiranja je 410 \AA ,⁴⁷ a vodljivost $2 \cdot 10^7 \text{ m}\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$.⁴⁸

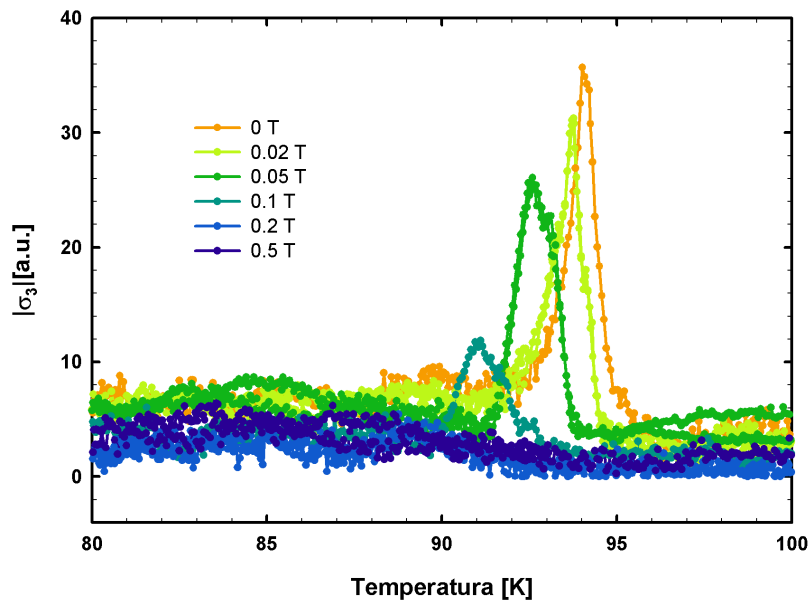


Slika 6: Drugi harmonik mjereno na monokristalu optimalno dopiranog HgBCO-a. Siva crta je predviđanje Coffeyevе teorije, uz parametre: $\lambda=120$ nm,⁴⁹ $\rho_n=0.2$ m Ω cm.⁵⁰Stepenica ispod T_c javlja se u svim kupratnim supravodičima koje smo mjerili.

3.3 HgBa₂CuO_{4+δ}

Na Slici 6 prikazani su rezultati mjerenja drugog i trećeg harmonika na optimalno dopiranom uzorku HgBCO-a. Vidimo da se maksimum u drugom harmoniku javlja oko $T_c \sim 94$ K, ali je preširok da bi se mogao opisati Coffeyevim modelom uz realistične parametre. Stepenica koja se javlja ispod T_c je izmjerena u svim drugim kupratnim uzorcima, i ne može se objasniti Coffeyevim modelom.

Treći harmonik (Slika ??) ima maksimum na istoj temperaturi kao i drugi, te pokazuje jaku ovisnost o vanjskom magnetskom polju. Temperaturni pomak maksimuma odgovora je vjerojatno posljedica pomicanja temperature prijelaza, iako bi nam trebala precizna mjerenja linearnog odgovora kako bismo bili sigurni da je to jedini uzrok.



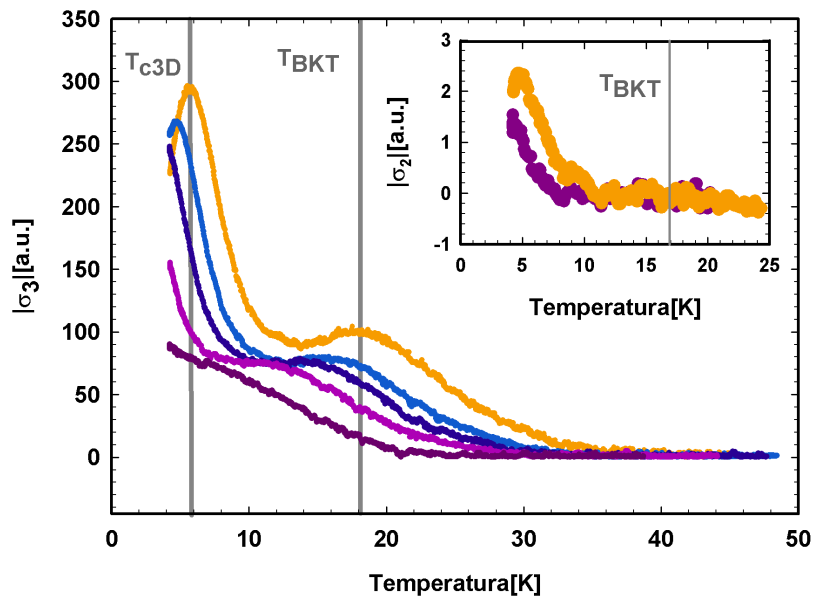
Slika 7: Treći harmonik HgBCO-a.

3.4 $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$

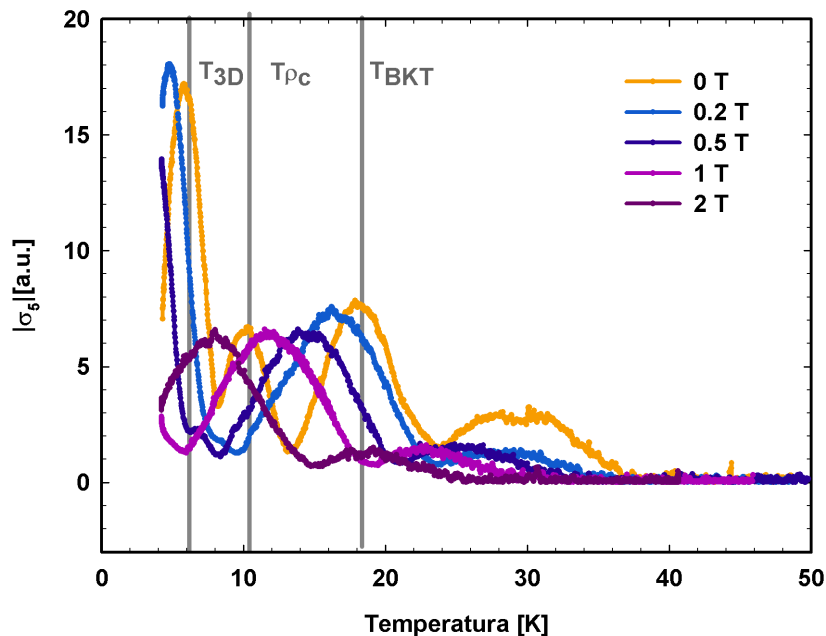
Na LBCO-u je izmjeren gotovo eksponencijalni pad linearne otpornosti u ravninama s početkom na oko 40 K i divergencija anizotropije na 18 K, dok do Meissnerovog efekta dolazi tek na 4 K. Ovakvo ponašanje upućuje na BKT prijelaz iznad T_c . Kod BKT prijelaza dovoljno daleko od T_c očekujemo neparne harmonike, ali ne i parne. Rezultati mjerenja trećeg i petog harmonika u polju su prikazani na Slikama 8 i 9.

Iz mjerenja trećeg harmonika je teško razlučiti pojave, dok peti ima puno bolju “rezoluciju” – jasno je vidljiv maksimum na $T_{BKT} = 18$ K, kako su je odredili Tranquada i suradnici. Preostali maksimumi odgovaraju nestanku otpornosti duž osi c (10 K) i trodimenzionalnom supravodljivom prijelazu (5 K). Podrijetlo maksimuma na 30 K još nije razjašnjeno, ali se kosi s tezom da dvodimenzionalne fluktuacije počinju na temperaturi od oko 40 K, budući da ukazuje na netrivialni proces.

U skladu s predviđanjima BKT teorije, nema odgovora na drugom harmoniku sve do prijelaza u 3D supravodljivo stanje, kako je vidljivo na umetku



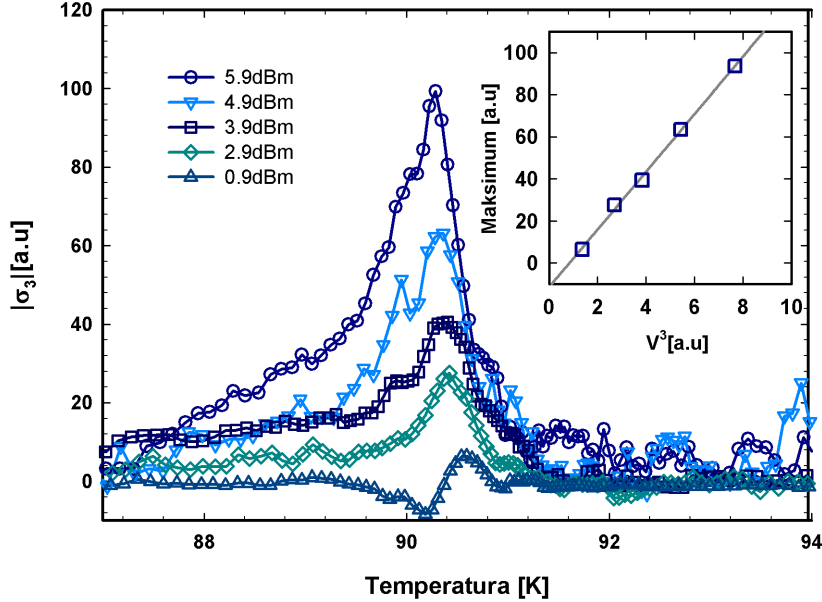
Slika 8: Treći harmonik $\text{LBCO}_{1/8}$. Vidljiv je maksimum na temperaturi trodimenzionalnog prijelaza ~ 4 K, i blagi maksimum oko 18 K, gdje je BKT prijelaz izmjeren drugim tehnikama. U umetku je prikazano mjerenje drugog harmonika, koji je potpuno ravan u okolici T_{BKT}



Slika 9: Peti harmonik $\text{LBCO}_{1/8}$. Jasno su vidljivi maksimumi na 4 K i 18 K, koji odgovaraju T_c i T_{BKT} , redom. Maksimum na 10 K odgovara temperaturi na kojoj nestaje otpornost duž osi c . Samo postojanje ovog vrha upućuje na koherenciju među ravninama. S druge strane, snažno potisnuće u polju upućuje na to da magnetsko polje ometa tu interakciju jače nego ravninske procese.

na Slici 8. Oblik signala na T_c nije jasan, budući da je temperatura prijelaza na samoj granici temperatura koje možemo postići s ovim eksperimentalnim postavom.

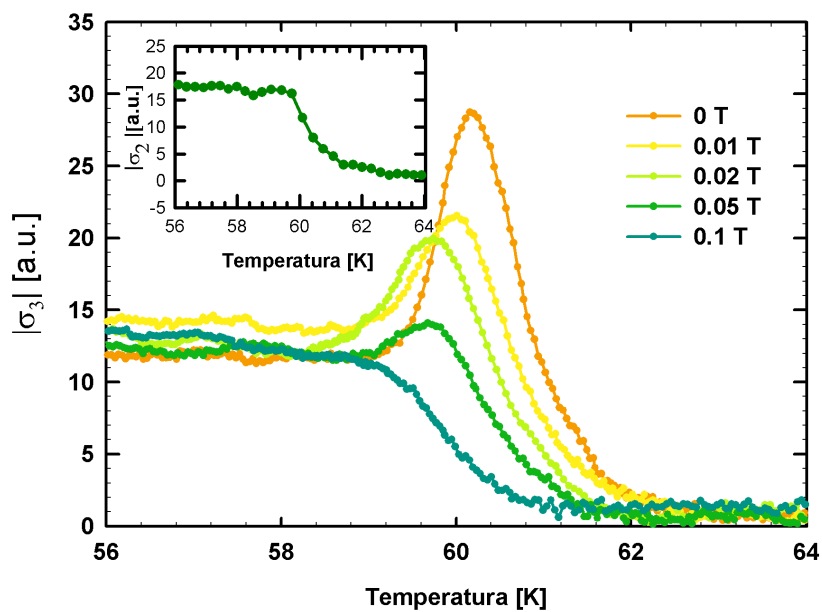
Jasan maksimum na 10 K opovrgava tezu o potpuno odvojenim ravninama, budući da sustav koji pobuđuje i detektira isključivo ravninske pojave može razaznati efekt koji se odvija duž osi c . S druge strane, znakovito je da s pojavom magnetskog polja taj maksimum biva u potpunosti potisnut, za razliku od onog koji je vezan uz ravninski proces. Ovakvo ponašanje je u skladu s teorijom kako magnetsko polje potiskuje koherenciju među ravninama, ali ne i same supravodljive fluktuacije.



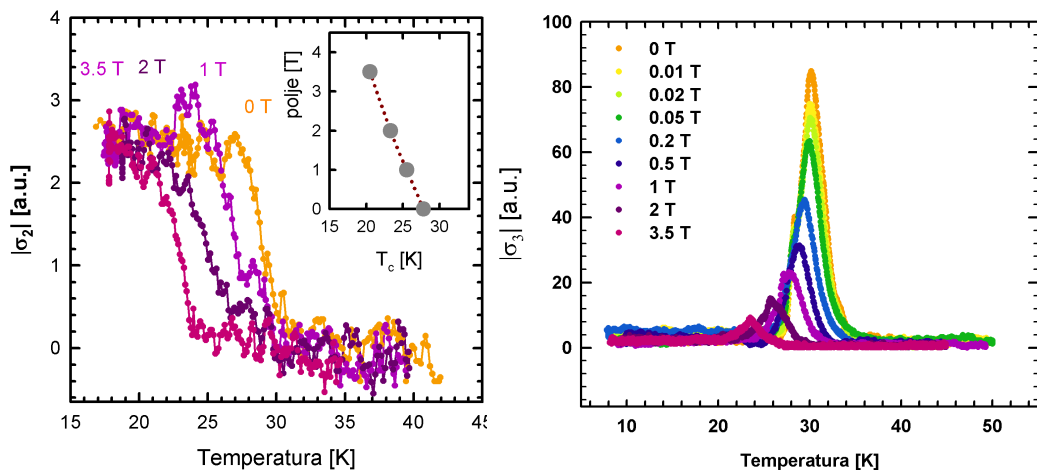
Slika 10: Ovisnost trećeg harmonika na monokristalu optimalno dopiranog YBCO-a o snazi pobude. U umetku je prikazana vrijednost maksimuma, i prilagođena ovisnost $I \sim V^3$

3.5 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

Na monokristalu optimalno dopiranog YBCO-a izmjerili smo ovisnost maksimuma trećeg harmonika o snazi. Rezultat je prikazan na Slici 10. Maksimum trećeg harmonika raste s kubom pobude, što je u skladu s izrazom (54). Treći i drugi harmonik na uzorku orijentiranog praha YBCO-a dopiranog cinkom (Slika 11) kvalitativno se ponašaju slično kao u monokristalima. Drugi harmonik ima stepenicu na temperaturi prijalaza ~ 66 K. Treći harmonik ima maksimum oko T_c , koji je jako potisnut magnetskim poljem. Uočljiva je stepenica u trećem harmoniku, koja se javlja i u drugim kupratnim uzorcima, ali ne i niobiju. Relativna visina stepenice u odnosu na maksimum je nešto veća nego u LSCO-u ili HgBCO-u, što je moguće posljedica razlike u strukturi.



Slika 11: Treći harmonik uzorka YBCO orijentiranog praha dopiranog cinkom. Vidimo da se kvalitativno ne ponaša drugačije od monokristalnih, uz eventualnu iznimku relativno više stepenice u odnosu na maksimum. U umetku je prikazan drugi harmonik.



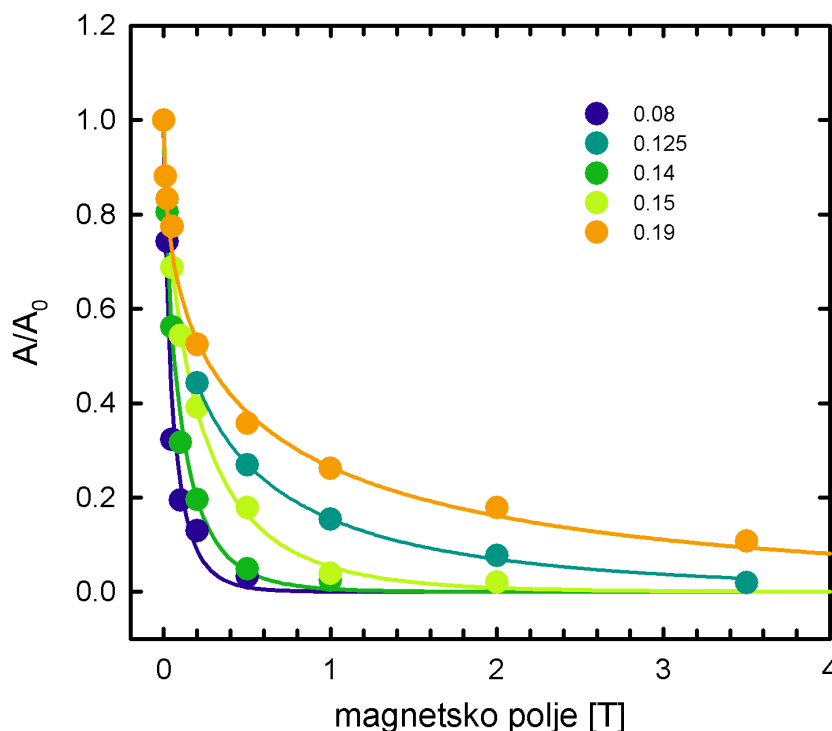
(a) Drugi harmonik u polju za LSCO_{0.19} (b) Treći harmonik u polju za LSCO_{0.19}

Slika 12: Primjeri mjerenja na uzorcima LSCO-a. Na svim dopiranjima su kvalitativno bili slični rezultati.

3.6 La_{2-x}Sr_xCuO₄

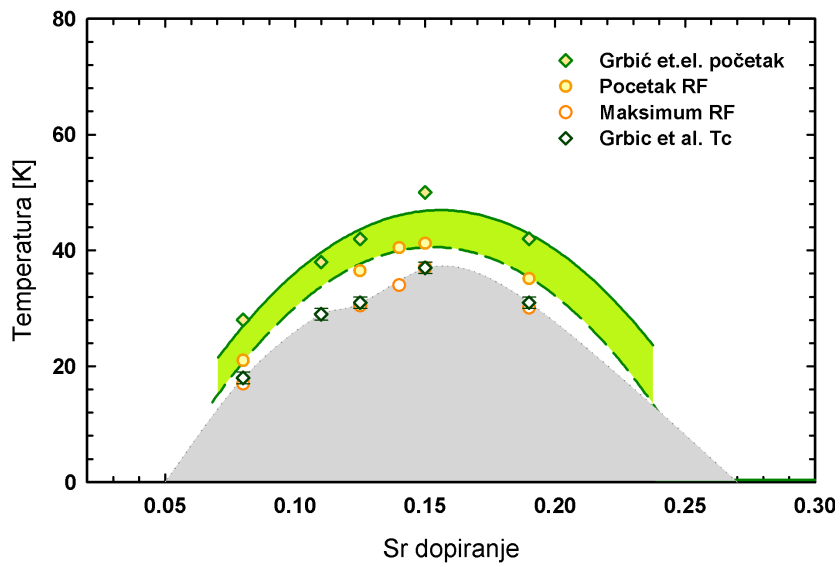
Mjerenja na uzorcima LSCO-a su prva takve vrste na tom spoju. Ukupno smo mjerili na pet dopiranja, koja sva pokazuju kvalitativno slične rezultate. Kao i u LBCO-u i YBCO-u, treći harmonik u LSCO-u na svim dopiranjima ima maksimum oko T_c (Slika 12b), dok se u drugom javlja samo stepenica (Slika 12a). I u LSCO-u, kao i u YBCO-u, postoji stepenica u trećem harmoniku koja nije ovisna o polju nego o dopiranju, i koja je moguće istog podrijetla kao i signal na drugom harmoniku, no kojom se ovdje nećemo baviti.

Izravna usporedba jakosti nelinearnih odgovora nije moguća jer su uzorci različitih veličina. Na Slici 13 prikazane su ovisnosti visine maksimuma o magnetskom polju za razna dopiranja, normirane na signal bez vanjskog polja. Vidljiv je generalni trend: potisnuće maksimuma se smanjuje s porastom dopiranja, uz iznimku uzorka LSCO_{1/8}, koji je slabo potisnut u usporedbi s ostalima. Činjenica da se $p = 1/8$ ponaša sličnije naddopiranim uzorcima je u proturječju s tezom da je za ponašanje trećeg harmonika odgovorna efektivna dvodimenzionalnost, naime naddopirani uzorci su općenito *manje*



Slika 13: Ovisnost visine maksimuma o magnetskom polju, za pet dopiranja LSCO-a. Kako raste dopiranje magnetsko polje sve slabije potiskuje signal, uz iznimku $\text{LSCO}_{1/8}$ koji je anomalno malo potisnut. Povučene crte služe samo kako bi vodile pogled.

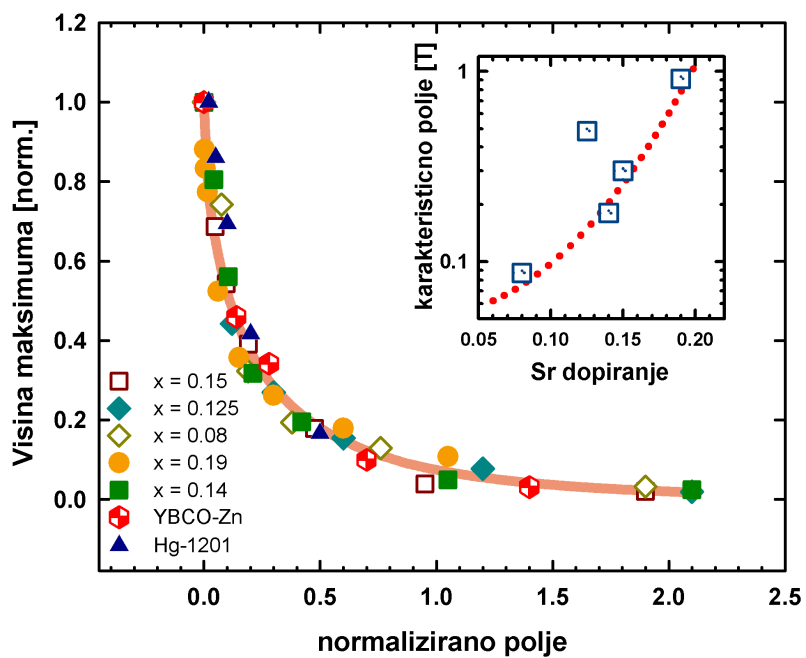
dvodimezionalni od poddopiranih, dok je $\text{LSCO}_{1/8}$ izrazito dvodimenzionalan. Na Slici 14 prikazan je fazni dijagram za LSCO na kojem su označene temperatura kada se treći harmonik javlja, i temperature maksimuma. Usporedbe radi, prikazane su temperature prijelaza i početka supravodljivih fluktuacija izmjerenih mikrovalnom metodom, kako su ih odredili Grbić i suradnici.²⁵ Temperature prijelaza slažu se unutar 1 K s maksimumima trećeg harmonika. Zanimljivo je primijetiti kako niti supravodljive fluktuacije niti početak nelinearnog odgovora za dopiranje $p = 1/8$ ne slijede potisnuće temperature prijelaza. Ovaj rezultat se opet može objasniti dvodimenzionalnim fluktuacijama, odnosno idejom da se supravodljivost u $\text{LSCO}_{1/8}$ javlja u ravninama isto kao i na ostalim dopiranjima, ali da je koherencija među ravninama narušena.



Slika 14: Fazni dijagram LSCO-a. Temperature maksimuma odgovaraju T_c , kako su je odredili Grbić et.al.²⁵ Niti početak nelinearnog odgovora niti supravodljive fluktuacije ne slijede potisnuće T_c na dopiranju $p = 1/8$, što ide u prilog teoriji o dvodimenzionalnoj supravodljivosti na tom dopiranju.

3.7 Univerzalnost trećeg harmonika

Priroda trećih harmonika u visokotemperaturnim supravodičima je drugačija od one u konvencionalnim, što se vidi na primjeru niobija. Maksimum je vrlo blizu temperature prijelaza određene drugim tehnikama, a širina ovisi o dopiranju, najširi je na $p = 1/8$. Budući da su uzorci različitih dimenzija, ne možemo izravno uspoređivati apsolutne iznose odgovora, ali možemo uspoređivati normirane ovisnosti o magnetskom polju. Sve mjerene krivulje ovisnosti trećeg harmonika o polju mogu se skalirati s jednim parametrom - karakterističnim poljem, i dobivena krivulja prikazana je na Slici 15. Sve izmjerene točke padaju na jednu krivulju, što pokazuje da je riječ o univerzalnoj pojavi, karakterističnoj za visokotemperaturne supravodiče, a ne općenita svojstva suprafluida. Karakteristično polje kojim su skalirane krivulje za razna dopiranja LSCO-a prikazano je na umetku na Slici 15, i vidljivo je jasno odstupanje za $\text{LSCO}_{1/8}$. Pitanje veze trećeg harmonika i dvodimenzionalnosti ostaje otvoreno za daljnja istraživanja.



Slika 15: Sve mjerene ovisnosti trećeg harmonika u polju. Uzorci iz tri obitelji, i pet dopiranja LSCO-a, padaju na istu krivulju, skalirani jednim parametrom. Ovo ukazuje na univerzalnost mjerene pojave. U umetku je prikazana ovisnost karakterističnog polja o dopiranju – jasno je vidljivo odstupanje na dopiranju $p = 1/8$.

4 Zaključak

Izmjerali smo odziv vodljivosti na drugom i trećem harmoniku na ukupno devet monokristala i jednom orijentiranom prahu kuprata, te monokristalu niobija. Pronašli smo univerzalno ponašanje trećeg harmonika, koji u blizini temperature prijelaza ima maksimum snažno ovisan o magnetskom polju. Normirana ovisnost o magnetskom polju može se za sve mjerene uzorke skalirati na jedan parametar – karakteristično polje. Također, u svim uzorcima se javlja stepenica drugog harmonika na temperaturi prijelaza. Coffeyev model predviđa vrh u drugom harmoniku, koji je, osim u niobiju, izmjeren samo na uzorku HgBCO-a, moguće zbog vrlo čiste kristalne strukture. Kvalitativno, postojanje trećeg harmonika uz izostanak drugog je u skladu s BKT teorijom, kao i činjenica da početak nelinearnog odgovora ne slijedi potisnuće temperature prijelaza za $\text{LSCO}_{1/8}$. S druge strane, parametar skaliranja ukazuje da je ponašanje $\text{LSCO}_{1/8}$ sličnije naddopiranim uzorcima, koji su općenito manje anizotropni, nego bliskijim dopiranjima. Slijedi da treći harmonik ili nije posljedica dvodimenzionalnih fluktuacija, ili je za odgovor u polju uz njih zaslužan još barem jedan, nezavisan, proces. Uz to, u LBCO-u izravno opažanje maksimuma na 10 K, kada otpornost duž osi c pada na nulu, dokazuje postojanje koherencije među ravninama, što se kosi s pretpostavkama BKT modela. Zaključujemo da, iako dvodimenzionalnost uzorka vjerojatno ima značajnu ulogu u supravodljivom prijelazu u kupratima, BKT teorijom ne možemo opisati mjerene rezultate.

Zahvale

Zahvaljujem kolegi Damjanu Pelcu, na općenitim i konkretnim savjetima te pomoći pri mjerenju i s interpretacijom rezultata. Također, zahvaljujem prof. dr. sc. Antoniju Dulčiću i prof. dr. sc. Denisu Sunku na izdvojenom vremenu i korisnim uvidima.

Posebno zahvaljujem mentoru prof. dr. sc. Miroslavu Požeku na uloženom trudu i vremenu, te uvijek konstruktivnim komentarima i velikom strpljenju.

Literatura

- ¹ M.Tinkham. *Introduction to Superconductivity*. McGraw-Hill, 1996.
- ² A.Shepelev. *The Discovery of Type II Superconductors (Shubnikov Phase)*. InTech, 2010.
- ³ J. W.Rohlf. *Modern Physics from α to Z^0* . Wiley, 1994.
- ⁴ A.Agliolo Gallitto and M.Li Vigni. Harmonic emission at microwave frequencies in YBa_2CuO_7 single crystals near T_c . *Physica C*, 305:75–84, 1998.
- ⁵ M.Golosovsky, M.Tsindlekht, and D.Davidov. High-frequency vortex dynamics in YBa_2CuO_7 . *Superconductor Science and Technology*, 9:1–15, 1996.
- ⁶ M.Požek. Magnetski ovisan odziv visokotemperaturnih supravodiča na mikrovalno zračenje. Doktorska disertacija, 1992.
- ⁷ J.Gittleman and B.Rosenblum. Radio-frequency resistance in the mixed state for subcritical currents. *Physical Review Letters*, 16(17):734–736, 1966.
- ⁸ A. I.Larkin and Y. N.Ovchinnikov. Pinning in type II superconductors. *Journal of Low Temperature Physics*, 34(3-4):409–428, 1979.
- ⁹ R. H.Koch, V.Foglietti, W. J.Gallagher, G.Koren, A.Gupta, and M. P. A.Fisher. Experimental evidence for vortex-glass superconductivity in Y-Ba-Cu-O. *Physical Review Letters*, 63(14):1511–1514, 1989.
- ¹⁰ D. S.Fisher, M. P. A.Fisher, and D. A.Huse. Thermal fluctuations, quenched disorder, phase transitions, and transport in type-II superconductors. *Physical Review B*, 43(1), 1991.
- ¹¹ J. G.Bednorz and K. A.Müller. Possible high T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system. *Zeitschrift fur Physik B Condensed Matter*, 64:189–193, June 1986.
- ¹² M. S.Grbić. Proučavanje supravodljivih fluktuacija i pseudoprocijepa u visokotemperaturnim supravodičima mikrovalnom metodom. Doktorska disertacija, 2010.

- ¹³ H.Grafe. Nuclear magnetic and quadrupole resonance studies of the stripes materials. *Physica C: Superconductivity*, 481:93–100, November 2012.
- ¹⁴ E.Fradkin and S. A.Kivelson. High temperature superconductivity:ineluctable complexity. *Nature Physics*, 8, 2012.
- ¹⁵ M. R.Norman, D.Pines, and C.Kallin. The pseudogap: friend or foe of high T_c? *Advances in Physics*, 2005.
- ¹⁶ A.Agliolo, M.Guccione, M.Li Vigni, and D.Persano Adorno. Investigation of nonlinear microwave response in YBCO samples. *Il Nuovo Cimento*, 19(October 1996):1–4, 1997.
- ¹⁷ A. V.Leviev, G. I.and Rylyakov and M. R.Trunin. Relaxation time of order parameter in YBaCuO single crystal. *JETP Lett*, 50(2):78–80, 1989.
- ¹⁸ S.-C.Lee, M.Sullivan, G. R.Ruchti, S. M.Anlage, B. S.Palmer, B.Maiorov, and E.Osquiguil. Doping-dependent nonlinear Meissner effect and spontaneous currents in high-T_c superconductors. *Physical Review B*, 71(1), 2005.
- ¹⁹ C.Jeffries, Q. H.Lam, Y.Kim, L. C.Bourne, and A.Zettl. Symmetry breaking and nonlinear electrodynamics in the ceramic superconductor YBa₂Cu₃O₇. *Physical Review B*, 37(16):4–8, 1988.
- ²⁰ L.Ji, R. H.Sohn, G. C.Spalding, C. J.Lobb, and M.Tinkham. Critical-state model for harmonic generation in high-temperature superconductors. *Physical Review B*, 40(16), 1989.
- ²¹ S.Martin, A. T.Fiory, R. M.Fleming, G. P.Espinosa, and C. A.S. Vortex-Pair Excitation near the Superconducting Transition of Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ Crystals. *Physical review Letters*, 62(6):677–680, 1989.
- ²² G. I.Leviev, R. S.Papikyan, and R.Trunin. Nonlinear microwave response of YBaCuO in a critical state. *Zh. Eksp. Teor. Fiz*, 99(July 1990):35–362, 1991.
- ²³ T.Mishonov, N.Chéenne, D.Robbes, and J.Indekeu. Generation of 3rd and 5th harmonics in a thin superconducting film by temperature oscillations

- and isothermal nonlinear current response. *The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems*, 26(3):291–296, 2002.
- ²⁴ M. W.Coffey. Nonlinear response of type-II superconductors in the mixed state in slab geometry. *Physical review B*, 47(22):298–301, 1993.
- ²⁵ M. S.Grbić, M.Požek, D.Paar, V.Hinkov, M.Raichle, D.Haug, B.Keimer, N.Barišić, and A.Dulčić. Temperature range of superconducting fluctuations above T_c in YBa_2CuO_4 single crystals. *Physical Review B*, 83:144508, Apr 2011.
- ²⁶ Q.Jie, S. J.Han, I.Dimitrov, J. M.Tranquada, and Q.Li. Transport properties of stripe-ordered high T_c cuprates. *Physica C*, 481, 2012.
- ²⁷ A. N.Lavrov, I.Tsukada, and Y.Ando. Normal-state conductivity in underdoped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ thin films: Search for nonlinear effects related to collective stripe motion. *Physical Review B*, 68, 2003.
- ²⁸ S. A.Kivelson, E.Fradkin, and V. J.Emery. Electronic liquid-crystal phases of a doped Mott insulator. *Nature*, 1998.
- ²⁹ K.Medvedyeva. Characteristic properties of two-dimensional superconductors close to the phase transition in zero magnetic field. Doktorska disertacija, 2003.
- ³⁰ S. M.Girvin. The Kosterlitz-Thouless Phase Transition. University Lecture, 2000.
- ³¹ N. D.Kuz'michev, M. A.Vasyutin, and A. I.Golovashkin. YBCO single crystals I–V characteristics nonlinearity and Nelson–Kosterlitz jump. *Physica C: Superconductivity*, 460-462:849–850, sep 2007.
- ³² Q.Li, M.Hücker, G.Gu, A.Tsvelik, and J. M.Tranquada. Two-Dimensional Superconducting Fluctuations in Stripe-Ordered $\text{La}_{1.875}\text{Ba}_{0.125}\text{CuO}_4$. *Physical Review Letters*, 99(6):067001, aug 2007.
- ³³ J. M.Tranquada, G.Gu, M.Hücker, Q.Jie, H.-J.Kang, R.Klingeler, Q.Li, N.Tristan, J.Wen, G.Xu, Z.Xu, J.Zhou, and M.v. Zimmermann. Evidence for unusual superconducting correlations coexisting with stripe order in $\text{La}_{1.875}\text{Ba}_{0.125}\text{CuO}_4$. *Physical Review B*, 78(17):174529, nov 2008.

- ³⁴ V. V. Bol'ginov, V. M. Genkin, G. I. Leviev, and L. V. Ovchinnikova. Nonlinear microwave response of YBCO single crystal in constant magnetic field. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 88(6):1229–1235, June 1999.
- ³⁵ G. Leviev, V. Genkin, V. Bolginov, and L. Ovchinnikova. Nonlinear microwave response of Bi-Sr-Ca-Cu-O single crystal at microwave frequencies. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 11(1):3430–3433, 2001.
- ³⁶ M. A. Vasyutin, A. I. Golovashkin, and N. D. Kuz'michev. Nonlinearity of the current-voltage characteristics for $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ single crystals and the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless transition. *Physics of the Solid State*, 48(12):2250–2259, dec 2006.
- ³⁷ G. L. Miller, D. A. H. Robinson, and J. D. Wiley. Contactless measurement of semiconductor conductivity by radio frequency free carrier power absorption. *Review of Scientific Instruments*, 47(7), 1976.
- ³⁸ N. Hegman, M. Meszaros, and K. Vad. Apparatus for complex ac magnetic susceptibility measurements in the radiofrequency range. *Measurement Science and Technology*, 6(1), 1995.
- ³⁹ D. I. Mircea, H. Xu, and S. M. Anlage. Phase-sensitive harmonic measurements of microwave nonlinearities in cuprate thin films. *Physical Review B*, 80(14), 2009.
- ⁴⁰ E. Scott, J. Stettler, and J. A. Reimer. Utility of a tuneless plug and play transmission line probe. *Journal of Magnetic Resonance*, 221(0), 2012.
- ⁴¹ C. Wenzel and W. Associates. New topology multiplier generates odd harmonics. *RF Design Magazine*.
- ⁴² D. K. Finnemore, T. F. Stromberg, and C. A. Swenson. Superconducting properties of high-purity niobium. *Physical Review*, 149:231–243, Sep 1966.
- ⁴³ H. H. Wu, M. Buchholz, C. Trabant, C. F. Chang, A. Komarek, F. Heigl, M. V. Zimmermann, M. Cwik, F. Nakamura, M. Braden, and C. Schüßler

- Langeheine. Charge stripe order near the surface of 12-percent doped La-xSrxCuO. *Nature Communications*, 3:1023, jan 2012.
- ⁴⁴ V.Hinkov, D.Haug, B.Fauqué, P.Bourges, Y.Sidis, A.Ivanov, C.Bernhard, C. T.Lin, and B.Keimer. Electronic Liquid Crystal State in the High-Temperature Superconductor YBa₂Cu₃O_{6.45}. *Science*, 319(5863), 2008.
- ⁴⁵ D.Pelc and T.Cvitanic. Neobjavljeni materijali, 2013.
- ⁴⁶ N.Chéenne, T.Mishonov, and J.Indekeu. Observation of a sharp lambda peak in the third harmonic voltage response of high-Tc superconductor thin films. *The European Physical Journal B - Condensed Matter*, 32(4):437–444, apr 2003.
- ⁴⁷ G. P.Felcher, R. T.Kampwirth, K. E.Gray, and R.Felici. Polarized-neutron reflections: A new technique used to measure the magnetic field penetration depth in superconducting niobium. *Physical Review Letters*.
- ⁴⁸ G. W.Webb. Low-temperature electrical resistivity of pure niobium. *Phys. Rev.*, 181:1127–1135, May 1969.
- ⁴⁹ Y.Ren. Vortex fluctuations, magnetic penetration depth, and H c 2 in Hg- and Tl-based high-T c superconductors. *Physical Review B*, 48(18):2–5, 1993.
- ⁵⁰ M.Gurvitch and A.Fiory. Resistivity of La 1.825 Sr 0.175 CuO 4 and YBa 2 Cu 3 O 7 to 1100 K: absence of saturation and its implications. *Physical review letters*, 59(12):1337–1340, 1987.

Sažetak

Beskontaktno su izmjereni drugi i treći harmonici odgovora visokotemperaturnih supravodiča na radiofrekventnu pobudu u blizini T_c . Odgovor na drugom harmoniku $\text{LBCO}_{1/8}$ -a, YBCO -a (optimalnog i dopiranog cinkom), te pet različito dopiranih LSCO uzoraka ima skok neovisan o magnetskom polju u blizini temperature prijelaza. Maksimum u drugom harmoniku, koji je dobro opisan Coffeyevim elektrodinamičkim modelom i koji je izmjereno u uzorku niobija, javlja se samo u HgBCO -u. Na svim uzorcima je izmjereno maksimum trećeg harmonika, koji se može kvalitativno objasniti dvodimenzionalnim BKT prijelazom, i koji pokazuje snažnu ovisnost o vanjskom magnetskom polju. Skaliranjem sve izmjerene točke, za tri obitelji i ped dopiranja, padaju na istu krivulju, što ukazuje na univerzalnost pojave. Ovisnost o polju pada s dopiranjem, a izmjereno je anomalno slabo na uzorku $\text{LSCO}_{1/8}$. Zaključujemo kako se nelinearni odziv ne može zadovoljavajuće objasniti samo BKT teorijom.

Summary

The second and third harmonic responses of high T_c superconductors in the radiofrequent band and the vicinity of T_c was measured. A doping-dependent and field-independent jump occurs in several cuprate samples – LBCO_{1/8}, YBCO, Zn-doped YBCO and five distinct LSCO samples. A peak in the second harmonic response was detected in a conventional superconductor – a Niobium monocrystal – but only in one of the cuprates: HgBCO. The peak and its dependence on the magnetic field are qualitatively well explained by Coffeys model. A field dependent peak in third harmonic response occurs universally, and might be explained in terms of the BKT transition. The field induced suppressions in all measured samples scale with a single parameter. Generally, suppression weakens with increased doping, except for sample LSCO_{1/8}, which is anomalously weakly affected. We conclude that the nonlinear behaviour in the vicinity of the superconducting phase transition can not be satisfactory explained solely by the BKT theory.

Životopis

Rođena sam 26.5.1991. u Zagrebu, gdje sam završila V. gimnaziju. Sudjelovala sam na Državnom natjecanju iz fizike 2007. i 2009. (3. nagrada) te na Truniru mladih fizičara (IYPT) 2007. i 2008. (2. mjesto). Kao učenik (2007., 2008.) i mentor (2011.) sudjelovala sam i osvojila prvu nagradu na Vip Eureki. Držala sam radionice na Ljetnoj školi HFD-a (2009. i 2011.) i Ljetnoj tvornici znanosti (2011.), a mentor sam na Ljetnoj školi znanosti S3++ (2014.). Držala sam demonstrature na predmetu Fizika za studente kemije (2011./2012., 2012./2013.) i Napredni fizički praktikum (2013./2014.). Trenutno sam studentica pete godine Istraživačkog smjera na Fizičkom odsjeku PMF-a, s prosjekom ocjena 4.92.